

(11)Publication number : 2002-003716  
(43)Date of publication of application : 09.01.2002

(51)Int.Cl. C08L 81/02  
B29C 45/00  
C08F210/00  
C08J 5/00  
C08K 3/00  
C08K 5/5415  
C08K 7/04  
//C08L 81/02  
C08L 23:00  
C08L 33:06  
C08L101:06  
C08L 63:00 )  
B29K 83:00

(21)Application number : 2000-181755 (71)Applicant : TORAY IND INC  
(22)Date of filing : 16.06.2000 (72)Inventor : ISHIO ATSUSHI

#### (54) POLYPHENYLENE SULFIDE RESIN COMPOSITION AND INJECTION MOLDING

##### (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain both a polyphenylene sulfide resin composition having a weld strength, especially an extremely high weld strength formed at the side of a cylindrical part and an injection molding.

SOLUTION: This polyphenylene sulfide resin composition is characterized in that the polyphenylene sulfide resin composition is obtained by compounding (a) 100 pts.wt. of a polyphenylene sulfide resin with (b) 4.5-15 pts.wt. of an olefin-based (co)polymer and (c) 20-90 pts.wt. of an inorganic filler and at least one kind of an epoxy group-containing olefin-based copolymer is contained as the (b) the olefin-based (co)polymer.

##### \* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

#### CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1](b) olefin system (\*\*) polymer to polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section (a) 5 - 15 weight section, (c) Are an inorganic filler a polyphenylene sulfide resin composition which carries out 20-90 weight-section combination, and as a (b) olefin system (\*\*) polymer, (b) A polyphenylene sulfide resin composition containing an epoxy group content olefin system copolymer which carries out copolymerization of 'alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester and the epoxy group content vinyl monomer as an essential ingredient.

[Claim 2](b) — a rate of a copolymerization ratio of epoxy group content olefin system copolymer being 5 to 48 % of the weight of 52 to 95 % of the weight of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester, and to the sum total of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester, (b) As opposed to a total of 85 to 99.5 % of the weight of the inside of epoxy group olefin system copolymer, alpha olefin, and alpha and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester, The polyphenylene sulfide resin composition according to claim 1 containing an epoxy group content olefin system copolymer which is 0.5 to 15 % of the weight of epoxy group content vinyl monomers as an essential ingredient.

[Claim 3](c) — claims 1-2 containing at least one or more sorts each characterized by fibrous filler and a non-fibrous filler as an inorganic filler — a polyphenylene sulfide resin composition of any or a statement.

[Claim 4](c) The polyphenylene sulfide resin composition according to claim 3 which contains a fibrous filler and at least one or more sorts each of non-fibrous fillers, and is characterized by a fibrous filler / non-fibrous filler weight ratio being 1 / 3 - 3 / 1 as an inorganic filler.

[Claim 5] claims 1-4 using an un-fibrous inorganic filler of glassiness as a non-fibrous filler — a polyphenylene sulfide resin composition of any or a statement.

[Claim 6](a) claims 1-5 characterized by using polyphenylene sulfide resin of straight chain shape substantially as polyphenylene sulfide resin — a polyphenylene sulfide resin composition of any or a statement.

[Claim 7](a) claims 1-6 characterized by melt viscosity (310 \*\*, 1,000/of shear rate second) using polyphenylene sulfide resin of 100 - 400 Pa-s as polyphenylene sulfide resin — a polyphenylene sulfide resin composition of any or a statement.

[Claim 8] An alkoxy silane compound chosen from the (d) epoxy group, an amino group, an ureido group, and an isocyanate group, (a) claims 1-7 characterized by carrying out 0.1-5 weight-section combination to polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section — a polyphenylene sulfide resin composition of any or a statement.

[Claim 9] claims 1-8 carrying out 0.1-5 weight-section combination of the polyfunctional epoxy compound which has two or more epoxy groups to (a) polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section into the (e) one molecule — a polyphenylene sulfide resin composition of any or a statement.

[Claim 10](b) olefin system (\*\*\*) polymer to polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section (a) 5 - 15 weight section, (c) Are an inorganic filler a polyphenylene sulfide resin composition which carries out 20-90 weight-section combination, and as a (b) olefin system (\*\*\*) polymer, A polyphenylene sulfide resin composition for ejection Plastic solids which has a cylinder part containing at least one sort of epoxy group content olefin system copolymers.

[Claim 11] injection molding which has a cylinder part — claims 1-9 which are the body and its function — a polyphenylene sulfide resin composition of any or a statement.

[Claim 12] A Plastic solid which carries out injection molding of the polyphenylene sulfide resin composition according to claim 10 or 11 and which has a cylinder part.

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and INPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.  
 2.\*\*\* shows the word which can not be translated.  
 3. In the drawings, any words are not translated.

---

## DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the polyphenylene sulfide resin composition whose weld strength, especially weld strength generated on the side of a cylinder part are very high, and its injection-molding object.

[0002]

[Description of the Prior Art] The heat resistance excellent in polyphenylene sulfide resin (it abbreviates to PPS resin below), It has character suitable as engineering plastics, such as fire retardancy, rigidity, chemical resistance, electric insulation, and resistance to moist heat, and the object for injection molding is used for several kinds of electric electronic component, a machine part, autparts, etc. as a center.

[0003] In recent years, taking advantage of the height of the chemical resistance and resistance to moist heat, application of PPS resin to the hollow cylinder member into which warm temperature water, gasoline, oil, etc. flow is advanced. When injection molding of the cylindrical member is carried out and deployment to this use is aimed at in order that a weld part may often form in the flank part, the improving strength of a weld portion serves as an important technical problem.

[0004] About the weld improving strength art of PPS, the art which adds a silane compound to PPS resin specific is indicated by JP,3-12453,A, for example. However, measurement of the weld strength is measurement by the test piece which has a weld part in the center section. The actual condition is that examination which paid its attention to the weld strength of the cylindrical shape member made into the present technical problem is hardly made until now. And according to this invention person's etc. examining result, in order to obtain the constituent which the tendency was not necessarily in agreement and was excellent in the weld strength of a cylinder side, the further examination was required for the intensity of a simple weld portion of shape like a test piece, and the weld strength of a cylinder side.

[0005]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] This invention makes a technical problem acquisition of the polyphenylene sulfide resin composition whose weld strength, especially weld strength generated on the side of a cylinder part are very high, and its injection-molding object.

[0006]

[Means for Solving the Problem] Then, this invention persons found out that high body weld strength was specifically revealed by mixing PPS resin, a specific olefin system (\*\*) polymer, and an inorganic filler in the specific combination range, as a result of inquiring wholeheartedly that the above-mentioned technical problem should be solved. Using together a fibrous filler and a non-fibrous filler as an inorganic filler found out that it was effective in, especially body weld improving strength, and it reached this invention.

[0007] That is, this invention comprises each following item.

(b) olefin system (\*\*) polymer to polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section 1.(a) 5 – 15 weight section, (c) Are an inorganic filler a polyphenylene sulfide resin composition which carries out 20-90 weight-section combination, and as a (b) olefin system (\*\*) polymer, (b) Polyphenylene sulfide resin composition containing an epoxy group content olefin system copolymer which carries out copolymerization of 'alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester and the epoxy group content vinyl monomer as an essential ingredient.

2. a rate of a copolymerization ratio of (b)' epoxy group content olefin system copolymer, It is 5 to 48 % of the weight of 52 to 95 % of the weight of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester to the sum total of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester, And it receives to a total of 85 to 99.5% of the weight of alpha olefin and alpha and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester among (b)' epoxy group olefin system copolymer, The polyphenylene sulfide resin composition according to claim 1 containing an epoxy

group content olefin system copolymer which is 0.5 to 15 % of the weight of epoxy group content vinyl monomers as an essential ingredient.

3. The above 1 containing—at least one or more sorts each characterized by fibrous filler and a non-fibrous filler as a (c) inorganic filler — dyadic any or a polyphenylene sulfide resin composition of a statement.

4. Polyphenylene sulfide resin composition given [ above-mentioned ] in 3 paragraphs which

contains a fibrous filler and at least one or more sorts each of non-fibrous fillers, and is characterized by a fibrous filler / non-fibrous filler weight ratio being 1 / 3 — 3/1 as a (c)

inorganic filler.

5. claims 1—4 using an un-fibrous inorganic filler of glassiness as a non-fibrous filler — a

polyphenylene sulfide resin composition of any or a statement.

6(a) Any of one to 5 above-mentioned paragraph characterized by using polyphenylene sulfide resin of straight chain shape substantially as polyphenylene sulfide resin, or polyphenylene sulfide resin composition of statement.

7(a) Any of one to 6 above-mentioned paragraph characterized by melt viscosity (310 \*\*, 1,000/of shear rate second) using polyphenylene sulfide resin of 100 — 400 Pa-s as

polyphenylene sulfide resin, or polyphenylene sulfide resin composition of statement.

8. An alkoxy silane compound furthermore chosen from the (d) epoxy group, an amino group, an ureido group, and an isocyanate group, (a) Any of the one to 7 above-mentioned paragraph

characterized by carrying out 0.1—5 weight-section combination to polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section, or a polyphenylene sulfide resin composition of a statement.

9. Any of the above 1 carrying out 0.1—5 weight-section combination of polyfunctional epoxy compound which has two or more epoxy groups to (a) polyphenylene-sulfide-resin 100 weight

section into the (e) one molecule furthermore — the 8th paragraph, or polyphenylene sulfide resin composition of statement.

(b) olefin system (\*\*) polymer to polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section 10.(a) 5 — 15

weight section, (c) Are an inorganic filler a polyphenylene sulfide resin composition which carries out 20—90 weight-section combination, and as a (b) olefin system (\*\*) polymer, A polyphenylene

sulfide resin composition for ejection Plastic solids which has a cylinder part containing at least

one sort of epoxy group content olefin system copolymers.

11. Any of the one to 9 above-mentioned paragraph which is an object for ejection Plastic solids

which has a cylinder part, or a polyphenylene sulfide resin composition of a statement.

12. A Plastic solid which carries out injection molding of the polyphenylene sulfide resin

composition the above 10 or given in 11 paragraphs and which has a cylinder part.

[Embodiment of the Invention] Hereafter, an embodiment of the invention is described. The

“weight” as used in this invention means “mass.”

[0009] The repeating unit indicated to be (a) polyphenylene sulfide resin used by this invention

with the following structural formula [0010]

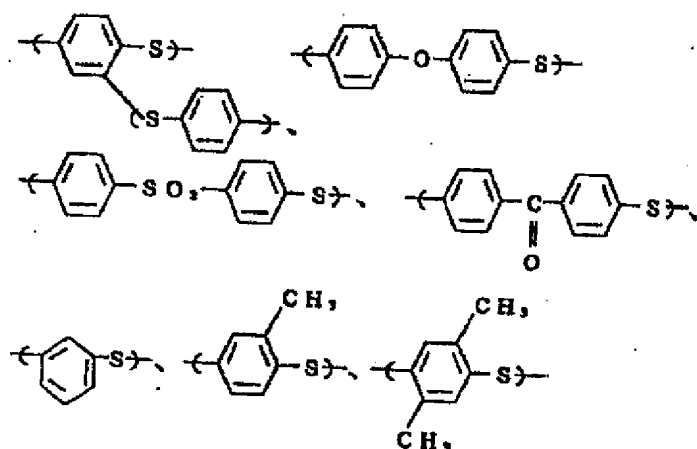


[Formula 1]

[0011] It is more than 70 mol % and a polymer which contains more than 90 mol % more preferably, and when there are too few above-mentioned repeating units, it is in the tendency for heat resistance to be spoiled. PPS resin can constitute less than [ of the repeating unit / 30 mol % ] from a repeating unit etc. which have the following structural formula.

[0012]

[Formula 2]



[0013] If melt kneading is possible for the melt viscosity of (a) PPS resin used by this invention, there will be no restriction in particular, but the thing of 10 - 1,000 Pa-s (310 \*\*, 1,000/of shear rate second) is usually used, and the range of 10 - 500 Pa-s is used more preferably. In this invention, especially the thing for which PPS resin of 100 - 400 Pa-s is used from the meaning which obtains the outstanding body weld strength is preferred. It is suitable again in using together 10 or more Pa-s of PPS resin of less than 100 Pa-s, and 100 or more Pa-s PPS of 400 or less Pa-s from a point of balance with mobility.

[0014] This PPS resin can be manufactured by a method of obtaining a polymer with a comparatively big molecular weight indicated to a method or JP,52-12240,B which obtains a polymer with a comparatively small molecular weight usually indicated, publicly known method, i.e., JP,45-3368,B, or JP,61-7332,A etc.

[0015] Bridge construction / polymers quantification according PPS resin obtained as mentioned above in this invention to heating among the air, Heat treatment under an inert gas atmosphere of nitrogen etc., or decompression, an organic solvent, Of course, it is also possible to use it, after performing various processings, such as activation with functional group content compounds, such as washing by hot water, an acid aqueous solution, etc., an acid anhydride, amine, an isocyanate, and a functional group content disulfide compound. However, especially a thing for which PPS resin of straight chain shape which is not introduced in the structure of cross linkage by heating among the air in a meaning which obtains more outstanding cylinder weld strength is used is preferred.

[0016] As the concrete method in a case of constructing a bridge/polymers quantifying depended on heating of PPS resin, A method of heating until melt viscosity which he wishes at a predetermined temperature in a heating container under oxidizing gas atmosphere, such as air and oxygen, or mixed gas atmosphere of said oxidizing gas and inactive gas, such as nitrogen and argon, is obtained can be illustrated. Although 170-280 \*\* is chosen, heat-treatment temperature is usually 200-270 \*\* preferably, 0.5 to 100 usual hours are chosen and time is 2 to 50 hours preferably, a target viscosity level can be obtained by controlling these both. Although a device of heat-treatment may be heating apparatus with a rotating type or an impeller also in usual hot air drying equipment again, when processing to homogeneity more moreover efficiently, it is more preferred to use heating apparatus with a rotating type or an impeller.

[0017] As the concrete method in a case of heat-treating PPS resin under an inert gas atmosphere of nitrogen etc., or decompression, In heat-treatment temperature of 150-280 \*\*, under an inert gas atmosphere of nitrogen etc., or decompression, 200-270 \*\* and the cooking time can illustrate a method of heat-treating preferably for 2 to 50 hours preferably for 0.5 to 100 hours. Although a device of heat-treatment may be heating apparatus with a rotating type or an impeller also in usual hot air drying equipment again, when processing to homogeneity more moreover efficiently, it is more preferred to use heating apparatus with a rotating type or an impeller.

[0018] The following methods can be illustrated as the concrete method in case an organic solvent washes PPS resin. Namely, if it does not have the operation etc. which disassemble PPS

resin as an organic solvent used for washing, there will be no restriction in particular, but. For example, nitrogen-containing polar solvents, such as N-methyl pyrrolidone, dimethylformamide, and dimethylacetamide, Sulfoxide series solvents, such as dimethyl sulfoxide and a dimethylsulfone, Ketone solvent, such as acetone, methyl ethyl ketone, a diethyl ketone, and an acetophenone, Ether system solvents, such as wood ether, dipropyl ether, and a tetrahydrofuran, Chloroform, a methylene chloride, trichloroethylene, ethylene dichloride, Halogen system solvents, such as dichloroethane, tetrachloroethane, and chlorobenzene, Methanol, ethanol, propanol, butanol, a pentanol, Aromatic hydrocarbon system solvents, such as alcoholic phenol system solvents, such as ethylene glycol, propylene glycol, phenol, cresol, and a polyethylene glycol, benzene, toluene, and xylene, etc. are raised. Use of N-methyl pyrrolidone, acetone, dimethylformamide, chloroform, etc. is preferred in these organic solvents. These organic solvents are used by one kind or two kinds or more of mixing. It is also possible for methods of washing by an organic solvent to include a method of making it PPS resin immersed into an organic solvent etc., and to agitate or heat suitably as occasion demands. There is no restriction in particular about washing temperature at the time of an organic solvent washing PPS resin, and about [ ordinary temperature -300 \*\* ] arbitrary temperature can be chosen. There is a tendency for washing efficiency to become high so that washing temperature becomes high, but an effect is usually enough acquired with ordinary temperature -150 \*\* washing temperature. As for PPS resin to which organic solvent washing was performed, it is preferred to wash several times with water or warm water in order to remove a remaining organic solvent.

[0019] The following methods can be illustrated as the concrete method in a case of processing PPS resin with hot water. That is, as for water to be used, in order to reveal an effect of the desirable chemical denaturation of PPS resin by hot water cleaning, it is preferred that they are distilled water or deionized water. Operation of hot water processing feeds PPS resin of the specified quantity into water of the specified quantity, and it is ordinary pressure or it is usually performed by heating and agitating within a pressure vessel. Although a rate of PPS resin and water has a preferred way with much water, a bath ratio below PPS resin 200g is usually chosen to 1 l. of water.

[0020] The following methods can be illustrated as the concrete method in a case of carrying out acid treatment of the PPS resin. That is, it is also possible for there to be a method of making solution of acid or acid immerse PPS resin etc., and to agitate or heat suitably as occasion demands. If acid used does not have the operation which decomposes PPS, there will be no restriction in particular, Aliphatic series saturation monocarboxylic acid, such as formic acid, acetic acid, propionic acid, and butanoic acid, Halo substitution aliphatic series saturated carboxylic acid, such as chloroacetic acid, acrylic acid, Inorganic acid, Inorganic acid series unsaturation monocarboxylic acid, such as crotonic acid, benzoic acid, and salicylic acid, oxalic acid, malonic acid, succinic acid, phthalic acid, and fumaric acid, sulfuric acid, phosphoric acid, chloride, carbonic acid, and silicic acid, etc. are raised. Acetic acid and chloride are used more preferably especially. As for PPS resin to which acid treatment was performed, it is preferred to wash several times with water or warm water in order to remove remaining acid or a salt etc. As for water used for washing, it is preferred that they are distilled water and deionized water in a meaning which does not spoil an effect of the desirable chemical denaturation of PPS resin by acid treatment.

[0021] Next, (b) olefin system (\*\*) polymer in this invention is explained. (b) olefin system (\*\*) polymer in this invention needs to contain at least one sort of epoxy group content olefin system copolymers.

[0022] As this epoxy group content olefin system copolymer, what epoxy-acid-ized double bond portions of an olefin system copolymer has glycidyl ester, glycidyl ether, etc., and an olefin system copolymer which has a double bond is mentioned to a side chain.

[0023] As a more concrete mode of this epoxy group content olefin system (\*\*) polymer, An olefin system copolymer in which copolymerization of the monomer which has an epoxy group was carried out is mentioned, and an epoxy group content olefin system copolymer which carries out copolymerization of the glycidyl ester of at least one sort of alpha olefins and at least one

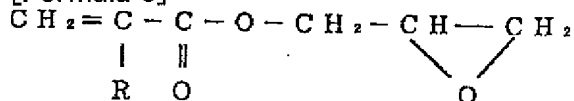
sort of alpha and beta-unsaturated acid especially is used suitably.

[0024]As an example of this alpha olefin, ethylene, propylene, butene-1, 4-methylpentene- 1, the hexene- 1, the decene 1, the octene- 1, etc. are mentioned, and ethylene is used preferably especially. These can also use two or more sorts simultaneously.

[0025]On the other hand, glycidyl ester of alpha and beta-unsaturated acid is a general formula.

[0026]

[Formula 3]



[0027]It is a compound shown by (R shows a hydrogen atom or a low-grade alkyl group here), and metaglycidyl acrylate, glycidyl methacrylate, glycidyl ethacrylate, etc. are specifically mentioned, and glycidyl methacrylate is used preferably especially.

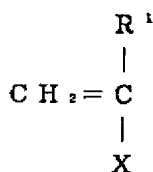
[0028]The olefin system copolymers which carry out copolymerization of the glycidyl ester of this alpha olefin and alpha, and beta-unsaturated acid may be the randomness of the above-mentioned alpha olefin and glycidyl ester of alpha and beta-unsaturated acid, alternation, a block, and which copolymerization form of a graft copolymer.

[0029]The amount of copolymerization of glycidyl ester of alpha olefin and alpha, alpha in the olefin system copolymer which carries out copolymerization of the glycidyl ester of beta-unsaturated acid, and beta-unsaturated acid, 3 to 30 % of the weight is especially preferred 0.5 to 40% of the weight from viewpoints of the influence on the target effect, polymerization nature, gelling, heat resistance, mobility, and intensity, etc.

[0030]An epoxy group content olefin system copolymer which uses as an essential ingredient a monomer (3) which is shown with a following general formula as an epoxy group content olefin system copolymer in this invention in addition to glycidyl ester (2) of alpha olefin (1) and alpha and beta-unsaturated acid is also used suitably.

[0031]

[Formula 4]



[0032](The basis which R<sup>1</sup> showed hydrogen or a low-grade alkyl group and as which X was chosen from the -COOR<sup>2</sup> group, -CN basis, or the aromatic group here.) R<sup>2</sup> shows the alkyl group of the carbon numbers 1-10.

The details of glycidyl ester (2) of the alpha olefin (1) used for this olefin system copolymer and alpha and beta-unsaturated acid are the same as that of the above.

[0033]On the other hand as an example of a monomer (3), methyl acrylate, ethyl acrylate, Acrylic acid n-propyl, acrylic acid isopropyl, acrylic acid n-butyl, Acrylic acid t-butyl, isobutyl acrylate, methyl methacrylate, Ethyl methacrylate, methacrylic acid n-propyl, methacrylic acid isopropyl, alpha, such as n-butyl methacrylate, t-butyl methacrylate, and methacrylic acid isobutyl, beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester, Acrylonitrile, styrene, alpha-methylstyrene, the styrene by which the aromatic ring was replaced by the alkyl group, an acrylonitrile styrene copolymer, etc. are mentioned, and these can also use two or more sorts simultaneously.

[0034]This olefin system copolymer Randomness of glycidyl ester (2) and a monomer (3) of alpha olefin (1) and alpha and beta-unsaturated acid, . As [ carried out / a monomer (3) / to a random copolymer of glycidyl ester (2) of alpha olefin (1) and alpha and beta-unsaturated acid / may be alternation, a block, and which copolymerization form of a graft, for example, / graft copolymerization ] It may be the copolymer in which two or more sorts of copolymerization forms were put together.

[0035]glycidyl ester (2) =60-99 % of the weight / 40 to 1% of the weight of the range of alpha

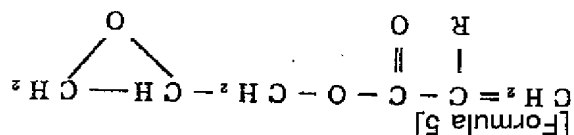
olefin (1) / alpha, and beta-unsaturated acid is preferably chosen from viewpoints of influence on purpose, polymerization nature, gelling, heat resistance, mobility, and intensity, etc. As for a copolymerization ratio of a monomer (3), the range (however, the sum total of (1), (2), and (3) is made into 100 % of the weight) of 5 to 60 % of the weight of monomers (3) is preferably chosen to 95 to 40 % of the weight of total quantities of glycidyl ester (2) of alpha olefin (1) and alpha and beta-unsaturated acid.

[0036] An epoxy group content olefin system copolymer which carries out copolymerization of (b) alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester and the epoxy group content vinyl monomer especially is used especially preferably, a rate of a copolymerization ratio being 5 to 48 % of the weight of 52 to 95 % of the weight of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester, and as a suitable copolymer, to the sum total of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester, especially, (b) An epoxy group content olefin system copolymer which is 0.5 to 15 % of the weight of epoxy group content vinyl monomers is mentioned among epoxy group content olefin system copolymer to a total of 85 to 99.5 % of the weight of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester. A rate of a copolymerization ratio is 15 to 40 % of the weight of 60 to 85 % of the weight of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester to the sum total of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester preferably, And an epoxy group content olefin system copolymer which is 0.5 to 15 % of the weight of epoxy group content vinyl monomers is mentioned to a total of 85 to 99.5 % of the weight of alpha olefin in (b) epoxy group content olefin system copolymer, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester.

[0037] As an example of alpha olefin which is this monomer component of especially suitable (b) epoxy group content olefin system copolymer, Ethylene, propylene, butene-1, 4-methylpentene-1, the hexene-1, the decene-1, the octene-1, etc. are mentioned, and ethylene is used preferably especially. These can also use two or more sorts simultaneously.

[0038] As alpha and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester which is another monomer component of suitable (b) epoxy group content olefin system copolymer, especially, It is alkyl ester, such as unsaturated carboxylic acid of 3-8 carbon numbers, for example, acrylic acid, and methacrylic acid, Specifically Methyl acrylate, ethyl acrylate, acrylic acid n-propyl, Acrylic acid isopropyl, acrylic acid n-butyl, acrylic acid t-butyl, Isobutyl acrylate, acrylic acid hexyl, methyl methacrylate, Ethyl methacrylate, methacrylic acid n-propyl, methacrylic acid isopropyl, N-butyl methacrylate, t-butyl methacrylate, methacrylic acid isobutyl, Methacrylic acid hexyl etc. can be illustrated and methyl acrylate, methyl methacrylate, ethyl acrylate, ethyl methacrylate, acrylic acid n-butyl, and n-butyl methacrylate are used preferably among these. These can also use two or more sorts simultaneously.

[0039] alpha, glycidyl ester of beta-unsaturated acid which can illustrate alpha, glycidyl ester of beta-unsaturated acid, glycidyl ether, etc., and are especially shown especially with a following general formula as an epoxy group content vinyl monomer which is a monomer component of suitable (b) epoxy group content olefin system copolymer [0040]



[0041] (R shows a hydrogen atom or a low-grade alkyl group here) is preferred. Metaglycidyl acrylate, glycidyl methacrylate, glycidyl ethacrylate, etc. are specifically mentioned, and glycidyl methacrylate is used preferably especially.

[0042] An epoxidation diene system block copolymer is mentioned as another desirable mode of the epoxy group content olefin system (\*\*) polymer in this invention.

[0043] With this epoxidation diene system block copolymer. The block copolymer which epoxidates the double bond originating in the conjugated diene compound of a block copolymer and a partially-hydrogenated block copolymer, and turns into the base, Polymeric block A which makes a subject at least one aromatic vinyl compound, It is a block copolymer which comprises



polymeric block B which makes a subject at least one conjugated diene compound, For example, it is an aromatic vinyl compound-conjugated diene compound block copolymer which has structures, such as A-B, A-B-A, B-A-B-A, 4(A-B)-Si, and A-B-A-B-A. A partially-hydrogenated block copolymer is obtained by hydrogenating this block copolymer. This block copolymer and a partially-hydrogenated block copolymer are described still in detail below.

[0044] Less than 95 % of the weight of 5 % of the weight or more, this block copolymer an aromatic vinyl compound, It contains ten to 50% of the weight still more preferably ten to 60% of the weight preferably, Polymeric block A made into a subject an aromatic vinyl compound A gay polymeric block of an aromatic vinyl compound, Or it has the structure of a copolymer block of an aromatic vinyl compound and a conjugated diene compound which exceed 50 % of the weight and contain an aromatic vinyl compound 70% of the weight or more preferably, Polymeric block B which furthermore makes a conjugated diene compound a subject has the structure of a gay polymeric block of a conjugated diene compound, or a copolymer block of a conjugated diene compound and an aromatic vinyl compound which exceed 50 % of the weight and in which a conjugated diene compound is contained 70% of the weight or more preferably. Polymeric block A which makes these aromatic vinyl compounds a subject and polymeric block B which makes a conjugated diene compound a subject, Distribution of a conjugated diene compound in a chain in each polymeric block or an aromatic vinyl compound Randomness, Tapered (that in which it meets in a chain, and a monomer component increases or decreases), It may change in block like shape or such arbitrary combination in part, When there are two or more polymeric blocks which make a subject a polymeric block and this conjugated diene compound which make this aromatic vinyl compound a subject, respectively, each may be the same structure and each polymeric block may be a different structure.

[0045] As an aromatic vinyl compound which constitutes a block copolymer, one sort or two sorts or more can be chosen from among styrene, alpha-methylstyrene, vinyltoluene, p-tertiary butyl styrene, 1,1-diphenylethylene, etc., for example, and styrene is especially preferred. As a conjugated diene compound, one sort or two sorts or more are chosen, for example from among butadiene, isoprene, 1,3-pentadiene, 2,3-dimethyl-1,3-butadiene, etc., and butadiene, isoprene, and such combination are especially preferred. And the polymeric block which makes a conjugated diene compound a subject can choose a microstructure in the block arbitrarily, for example, in a polybutadiene block, 5 to 65% of range is desirable especially preferred, and 1 and 2-vinyl-bonds structure is 10 to 50% of range.

[0046] a number average molecular weight of a block copolymer which has the above-mentioned structure -- usually -- 5,000-1,000,000 -- desirable -- 10,000-800,000 -- it is the range of 30,000-500,000 still more preferably -- molecular weight distribution [A ratio (Mw/Mn) of weight average molecular weight (Mw) and a number average molecular weight (Mn)] is ten or less. Furthermore, molecular structure of a block copolymer may be any of straight chain shape, branched state, radials, or such arbitrary combination.

[0047] As long as it has the above-mentioned structure as a manufacturing method of these block copolymers, you may be obtained with what kind of manufacturing method. For example, an aromatic vinyl compound-conjugated diene compound block copolymer is compoundable in an inert solvent by a method indicated to JP,40-23798,B using a lithium catalyst.

[0048] A partially-hydrogenated block copolymer is what is obtained by hydrogenating the applied above-mentioned aromatic vinyl compound-conjugated diene compound block copolymer, Although a method indicated, for example to JP,42-8704,B and JP,43-6636,B is also employable as a manufacturing method of this hydrogenation block copolymer, A hydrogenation block copolymer compounded using a titanium system hydrogenation catalyst which demonstrates performance excellent in the weatherability of a hydrogenation block copolymer obtained especially and heat-resistant degradation nature is the most preferred, For example, in an inert solvent, under existence of a titanium system hydrogenation catalyst, a block copolymer which has the above-mentioned structure can be hydrogenated, and a hydrogenation block copolymer can be compounded by a method indicated to JP,59-133203,A and JP,60-79005,A. In that case, an aliphatic double bond based on a conjugated diene compound of an aromatic vinyl compound-conjugated diene compound block copolymer makes 0 to 99% hydrogenate, and carries out

hydrogenation of the 0 to 70% preferably. These block copolymers and a partially-hydrogenated block copolymer are marketed, and can be obtained easily.

[0049]Next, an epoxidation diene system block copolymer which can be used as one of the (b) ingredients of this invention makes an epoxidation agent react to a block copolymer which has the above-mentioned structure, and a partially-hydrogenated block copolymer, and epoxidates an alliphatic double bond based on a conjugated diene compound. An epoxidation diene system block copolymer or a partially-hydrogenated block copolymer react to epoxidation agents, such as hydroperoxide and peroxy acids, in an inert solvent. As peroxy acids, hydrogen peroxide or molybdenumhexacarbonyl can be used [ a mixture of performic acid, peracetic acid, and perbenzoic acid ] together with tertiarybutyl hydroperoxide for hydrogen peroxide or organic acid, and a catalytic effect can be acquired. The optimum amount of an epoxidation agent can be decided by variable factors, such as each epoxidation agent to be used, the degree of epoxidation for which it asks, and each block copolymer to be used. Isolation of an obtained epoxidation diene system block copolymer can be directly performed by suitable method, for example, a method of settling with a poor solvent, method of throwing in a polymer under stirring in hot water, and carrying out distillation removal of the solvent, the deliquoring method, etc.

[0050]Although there is no regulation in particular in a grade of epoxidation of this epoxidation diene system block copolymer, it is preferred that they are 7 or less % of the weight of oxirane oxygen 0.1-% of the weight or more concentration, and it is preferred that it is especially 5 or less % of the weight of 1.0 % of the weight or more. Shock strengthening of a PPS resin composition and appearance properties are good in oxirane oxygen concentration being a mentioned range, and it is desirable at a point that heat resistance which layer exfoliation was controlled and was stabilized is obtained.

[0051]In this invention, although an epoxy group content olefin system copolymer is an essential ingredient as a (b) olefin system (\*\*) polymer, other olefin system (\*\*) polymers may be used together.

[0052]As an olefin system (\*\*) polymer of these others, Ethylene propylene rubber, an ethylene-butene copolymer, an ethylene-octene copolymer, A copolymer of ethylene, such as an ethylene-hexene copolymer, and alpha olefin, Polyethylene, polypropylene, polystyrene, polybutene, an ethylene-propylene-diene copolymer, A styrene butadiene copolymer, styrene butadiene styrene block copolymer (SBS), Styrene isoprene styrene block copolymer (SIS), polybutadiene, Butadiene Acrylonitrile, polyisoprene, a butene-isoprene copolymer, An olefin system copolymer etc. which consist of styrene ethylene butylene styrene block copolymer (SEBS), styrene ethylene propylene styrene block copolymer (SEPS), above-mentioned alpha olefin, and above-mentioned alpha and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester can be illustrated. An olefin system copolymer etc. in which copolymerization of the salts, such as carboxylic acid, such as acid anhydrides, such as a maleic acid anhydride, a succinic anhydride, and a fumaric acid anhydride, acrylic acid, methacrylic acid, and vinyl acetate, and Na of those, Zn, K, Ca, and Mg, was carried out to these olefin system (\*\*) polymers can be illustrated.

[0053]as for the quantity, when using olefin system (\*\*) polymers other than an epoxy group content olefin system copolymer in this invention, it is preferred that it is 75 or less % of the weight of the entire volume of (b) olefin system (\*\*) polymer — 50 or less % of the weight of a range — especially — good — it is easy to be better. If there are too many amounts of olefin system (\*\*) polymers other than an epoxy group content olefin system copolymer, a fall of weld strength is caused and it is not desirable.

[0054]it is dramatically important to make content of (b) olefin system (\*\*) polymer into 5 — 15 weight section to (a) polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section in this invention, when obtaining high cylinder weld strength — the range of 7 — 13 weight section — especially — good — better — a stake. If it separates from a mentioned range, it is not desirable in order to cause a fall of cylinder weld strength.

[0055]Next, the (c) inorganic filler which is another essential ingredient in this invention is explained.

[0056]When being able to use a fibrous filler and a non-fibrous filler and using both together as

an example of an inorganic filler in this invention obtains high general intensity and cylinder weld strength simultaneously, it is preferred.

[0057]With a fibrous filler in this invention, length / diameter ratio defines it as 20 or more things.

[0058]As a fibrous filler which can be used by this invention, glass fiber, carbon fiber, a metal fiber, etc. are mentioned. On the other hand as a non-fibrous filler, Huaras Tena Ito, zeolite, a sericite, Mica, talc, kaolin, clay, pyrophyllite, bentonite, Silicate, such as asbestos and alumina silicate, alumina, oxidized silicon, Metallic compounds, such as magnesium oxide, zirconium oxide, titanium oxide, and iron oxide, Carbonate, such as calcium carbonate, magnesium carbonate, and dolomite, calcium sulfate, Although hydroxide, such as sulfate, such as barium sulfate, calcium hydroxide, magnesium hydroxide, and aluminium hydroxide, a glass bead, a ceramic bead, boron nitride, silicon carbide, graphite, carbon black, silica, etc. are mentioned, Especially glassiness fillers, such as a glass bead, a milled fiber (glass staple fiber), and glass powder, are especially preferred.

[0059]These may be hollow and it is also possible to use together two or more kinds of these bulking agents further. It is preferred to use them by coupling agents, such as an isocyanate system compound, the organic Silang system compound, an organic titanate compound, an organic borane system compound, and an epoxy compound, carrying out conditioning of these fillers in a meaning which obtains a more outstanding mechanical strength.

[0060]The range of the (c) inorganic filler 20 - 90 weight sections is chosen to (a) polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section, and loadings of this (c) inorganic filler have especially the preferred range of 30 - 60 weight section. (c) Since problems, such as the reduction of rigidity, may arise when too undesirably small on the other hand, in order to spoil mobility and weld strength, if there are too many inorganic fillers, it is not desirable.

[0061]It is preferred to use together a fibrous filler and a non-fibrous filler in this invention, when obtaining simultaneously high general intensity, rigidity, and cylinder weld strength. As a concomitant use rate in a case of using these together, the range of 1 / 3 - 3/1 has preferred \*\*-like filler / non-fibrous filler weight ratio.

[0062]In this invention, an alkoxy silane compound chosen from the (d) epoxy group, an amino group, an ureido group, and an isocyanate group, (a) More preferably carrying out 1.2-2.0 weight-section addition still more preferably 0.9 to 2.0 weight section 0.1 to 5 weight section to polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section, It is desirable in a meaning which obtains high toughness, outstanding weld strength, and the outstanding fabricating-operation characteristic (for example, reduction of a barricade yield).

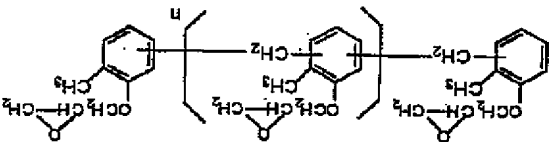
[0063]As an example of this compound, gamma-glycidoxypolytrimetoxysilane, Epoxy group content alkoxy silane compounds, such as gamma-glycidoxy propyl TORIETOKISHISHI silane and beta-(3,4-epoxycyclohexyl) ethyltrimethoxysilane, gamma-ureido propyl triethoxysilane, gamma-ureido propyl trimethoxy SHISHIRAN, Ureido group content alkoxy silane compounds, such as gamma-(2-ureido ethyl) aminopropyl trimethoxysilane, gamma-isocyanatopropyl triethoxysilane, gamma-isocyanato propyltrimethoxysilane, gamma-isocyanato propylmethyl dimethoxysilane, gamma-isocyanato propylmethyl diethoxysilane, gamma-isocyanatopropylethyl dimethoxyshiran, gamma-isocyanatopropylethyl diethoxysilane, Isocyanato group content alkoxy silane compounds, such as gamma-isocyanatopropyltrichlorosilane, Amino group content alkoxy silane compounds, such as gamma-(2-aminoethyl) aminopropyl methyl dimethoxysilane, gamma-(2-aminoethyl) aminopropyl trimethoxysilane, and gamma-aminopropyl trimethoxysilane, are mentioned, Especially Gamma-glycidoxypolytrimetoxysilane, beta-(3, 4-epoxycyclohexyl) ethyltrimethoxysilane, gamma-(2-aminoethyl) aminopropyl methyl dimethoxysilane, gamma-(2-aminoethyl) aminopropyl trimethoxysilane, especially gamma-aminopropyl trimethoxysilane, etc. are preferred.

[0064]In this invention, a polyfunctional epoxy compound which has two or more epoxy groups in the (e) one molecule, (a) More preferably carrying out 1.2-2.0 weight-section addition still more preferably 0.9 to 2.0 weight section 0.1 to 5 weight section to polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section, It is desirable in a meaning which obtains high toughness, outstanding weld strength, and the outstanding fabricating-operation characteristic (for example, reduction of a

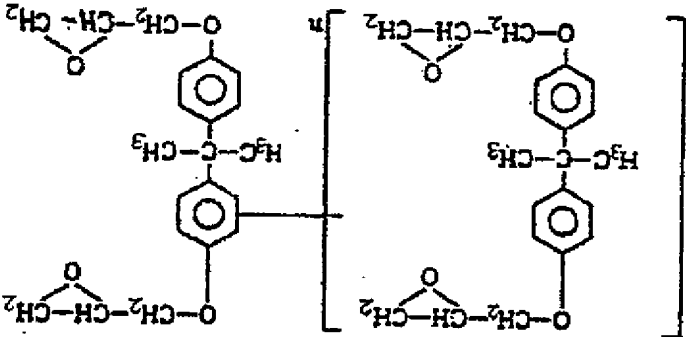
barricade yield).

[0065] As a polyfunctional epoxy compound which has two or more epoxy groups in this the (e) one molecule, Bisphenol A, the bisphenol F, the bisphenol S, bisphenol A D, 4,4'-dihydroxybiphenyl, resorcinol, A saligenin, trihydroxydimethyldimethane, tetra FENI roll ethane, These halogenation objects and an alkyl group substitution product, butanediol, A glycidyl ether system compounded from a compound which contains two or more hydroxyls, such as ethylene glycol, Elisit, novolac, glycerin, and polyoxaalkylene, in intramolecular, epichlorohydrin, etc., The Grouchy will ester systems, such as phthalic acid glycidyl ester, aniline, A glycidyl amine system compounded from the first or a secondary amine, epichlorohydrin, etc., such as diaminodiphenylmethane, meta xylenediamine, 1, and 3-BISUA mini methyldichlorohexane, A polyfunctional phenol type epoxy resin which non-glycidyl epoxy resins, such as a glycidyl epoxy resin of \*\*\*, epoxidized soybean oil, vinylcyclohexene dioxide, and dicyclopentadiene dioxide, etc. were mentioned, and was shown below especially is preferred, Especially orthocresolnovolak glycidyl ether is especially preferred.

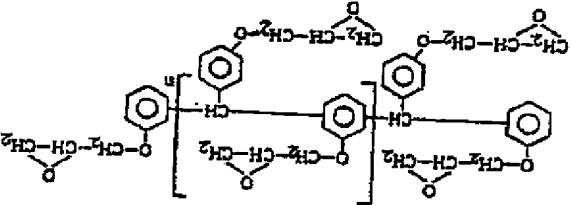
[0066]  
[Formula 6]



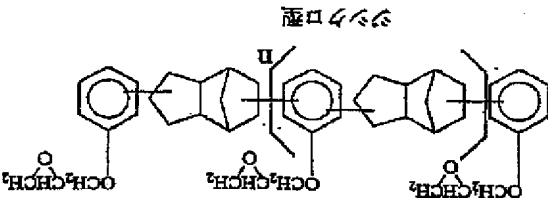
ポリノールノボラック型



D P P ノボラック型

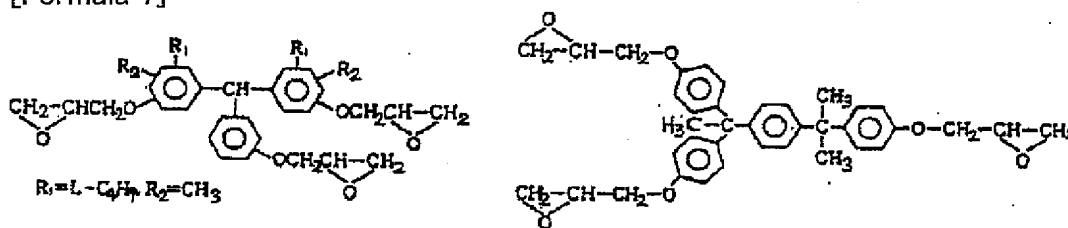


トリスヒドロキシエニルメタン型



シスカ型

[Formula 7]



### 置換 3 官能型

[0068] It is considered as the polyfunctional epoxy compound which has two or more epoxy groups in the (e) one molecule, and above-mentioned (b) epoxy group content olefin system copolymer is excepted.

[0069] In the range which does not spoil the effect of this invention in the PPS resin composition of this invention, A polyalkylene oxide oligomer system compound, a thioether series compound, Plasticizers, such as an ester system compound and an organophosphorus compound, talc, kaolin, Nucleus agents, such as an organophosphorus compound, a polyolefin system compound, a silicone series compound, Release agents, such as a long chain aliphatic series ester system compound and a long chain aliphatic series amide system compound, The usual additive agents, such as lubricant, such as antioxidants, such as a hindered phenol system compound and a hindered amine system compound, a thermostabilizer, calcium stearate, aluminum stearate, and lithium stearate, ultraviolet inhibitor, colorant, fire retardant, and a foaming agent, can be added.

[0070] In a range which does not spoil an effect of this invention in a PPS resin composition of this invention, Polyphenylene oxide, polysulfone, polytetrafluoro ethylene, polyether imide, Polyamidoimide, polyimide, polycarbonate, polyether sulphone, Polyether ketone, polythioether ketone, a polyether ether ketone, An epoxy resin, phenol resin, nylon 6, Nylon 66, Nylon 610, Nylon 11, Nylon 12, aromatic nylon, Other resin, such as polybutylene terephthalate, polyethylene terephthalate, PORISHIKURI hexyl dimethylene terephthalate, ABS plastics, a polyamide elastomer, a polyester elastomer, and polyalkylene oxide, may also be included.

[0071] Although a preparing method of a PPS resin composition of this invention does not have restriction in particular, a mixture of a raw material A monopodium or a biaxial extrusion machine, A method of supplying to usually publicly known melting mixers, such as a Banbury mixer, a kneader, and a roll mill, and kneading at temperature of 280–380 \*\*, etc. can be mentioned as an example of representation. A method which restriction in particular does not have in a mixed sequence foreword of a raw material, either, and carries out melt kneading of all the raw materials by a method of an account of combination Gokami, Melt kneading of a part of raw materials may be carried out by a method of an account of combination Gokami, and which methods, such as a method of blending and carrying out melt kneading of the further remaining raw material or the method of using a side feeder for a part of raw materials during melt kneading with an after-combination monopodium or a biaxial extrusion machine, and mixing the remaining raw material, may be used. About a small-quantity additive component, after kneading and pelletizing other ingredients by an above-mentioned method etc., of course, it is also possible to add before shaping and to present shaping.

[0072] Especially a resin composition of this invention is a constituent excellent in intensity of a weld portion produced in a lateral portion of a cylindrical shape injection-molding object.

[0073]therefore, injection molding which has a cylindrical shape portion -- the body and its function -- injection molding which has a cylindrical shape portion used under environment where it is useful in a way and an inside is pressurized by 1 atmospheres or more -- the body and its function -- in especially a way, it is useful. As the concrete use, a pump part, pipe joint, an amount-of-water control valve, a relief valve hot water temperature sensor, a water quantity sensor, waterworks meter housing, etc. can be illustrated.

[0074] A constituent of this invention is applicable also to uses other than the above, and for them as this use, For example, a sensor, a LED lamp, a connector, a socket, a resistor, a relay case, A switch, a coil bobbin, a capacitor, a variable condenser case, an optical pickup, A

radiator, various tag blocks, a transformer, a plug, a printed circuit board, a tuner, A speaker, a microphone, headphone, a size motor, a magnetic head base, A power module, a semiconductor, a liquid crystal, a FDD carriage, a FDD chassis, A motor brush electrode holder, motor inn Schroter, a parabolic antenna, An electric electronic component represented by computer associated part etc.; A VTR part article, Television parts, an iron, a hair drier, rice cooker parts, microwave oven parts, Audio apparatus parts, such as an acoustic component and an audio laser disc (registered trademark) compact disk, A home, clerical work electric product parts which are represented by a lighting part, refrigerator parts, air-conditioner parts, typewriter parts, word processor parts, etc.; An office computer associated part, a telephone associated part, a facsimile associated part, a copying machine associated part, a jig for washing, a motor part article, a writer, A machinery associated part represented by typewriter etc. : A microscope, binoculars, a camera, An optical instrument, a precision instrument associated part which are represented by clock etc.; A waterworks faucet top, water mixing valves, Circumference parts of which water; A valve AC-dynamo terminal, an AC-dynamo connector, an I.C. regulator, Various valves, such as a potentiometer base for light DIVA, and an exhaust air gas valve, A fuel relation, an exhaust system and suction system various pipes, an air intake nozzle snorkel, An intake manifold, a fuel pump, engine-cooling-water joint, Carburetor main body, a carburetor spacer, an exhaust gas sensor, A cooling water sensor, an oil temperature sensor, a brake pad wear sensor, A throttle position sensor, a crankshaft position sensor, An air flow meter, a brake-friction-pad wear sensor, a thermostat base for air-conditioners, A heating warm air flow control valve, a brush electrode holder for radiator motors, A water pump impeller, a turbine vein, windshield-wiper-motor relation parts, DEYUSUTORIBYUTA, a starting switch, a starter relay, wire harness for transmission, a window WOSSH nozzle, An air conditioning panel switch board, a coil for fuel relation electromagnetism valves, a connector for fuses, Horn terminals, an electric equipment article electric insulating plate, a stepping motor rotor, a lamp socket, Motor vehicle associated parts, such as a lamp reflector, a lamp housing, a brake piston, a solenoid bobbin, an engine oil filter, an ignition case, a speed sensor, and a cable liner, and other various applications can be illustrated.

[0075]

[Example] Although an example is shown below and this invention is explained to it still more concretely, this invention is not limited to the statement of these examples. In the following examples, the following method estimated test piece weld strength and cylinder weld strength. [0076] [Test piece weld strength] The resin composition was ejected from the both ends of the piece of an ASTM No. 1 dumbbell which has a gate to both ends using the injection molding machine (resin preset temperature: 320 °C of bottom 280 °C of hopper - tips), and the specimen which has a weld part in the center section was obtained. Using this specimen, the tensile test was done the speed for distance [ of 14 mm ] between zippers, and rate of strain/of 5 mm, and breaking strength was made into test piece weld strength. [0077] [Cylinder weld strength] Injection molding of the piece 1 of cylindrical shape shaping the outer diameter of 25 mm, 20 mm in inside diameter, and 30 mm in height shown in drawing 1 was carried out at the two-point gate of the pin gate positions a and b using the injection molding machine (resin preset temperature: 320 °C of bottom 280 °C of hopper - tips). Next, 8 division metal piece 2 shown in drawing 1 was inserted into the piece of cylindrical shape shaping (1), and it equipped with it, and the cone type metal stick 3 was inserted in the inner surface, and was set to 8 division metal piece 2. This metal stick 3 was pushed in the speed for 3-mm/using the tension tester (the Shimadzu make, autograph AG-2000C), and the compression test was done. Destruction was generated in the side weld parts 4 and 5. Breaking strength in that case was made into cylinder weld strength.

[0078] [Flexural strength] A PPS resin pellet 280 °C (under a hopper) - 320 °C (nozzle side) of cylinder temperatures, Injection molding was performed using the injection molding machine by Sumitomo-NESUTARU (SG-75 HIPRO MIII) on conditions with a die temperature of 140 °C, and the 127mmx12.7mmx6.35mm rectangular parallelepiped specimen was obtained. Caged tech company make tension RTA-T testing machine is used under the atmosphere of the temperature of 23 °C, and 50% of relative humidity using this specimen. The specimen was placed

in the direction which touches a fulcrum in a field (12.7 mm x 127 mm), the bending test was done by the distance between fulcrums of 100 mm, and 3 mm of crossheads, and it was considered as flexural strength in quest of breaking strength.

[0079](a) PPS resin a1 : straight-chain-shape PPS resin and melt viscosity 50Paands (310 \*\*) 1000/of shear rates -- a second -- an ash content -- 0.05 -- % of the weight -- a2 -- : -- oxidation bridge construction of straight-chain-shape PPS resin, melt viscosity 250 Pa-s (310 \*\*, 1000/of shear-rates second), and 0.08 % of the weight of ash content a3:a1 was carried out under 210 \*\* and an air atmosphere. Melt viscosity 100 Pa-s (310 \*\*, 1000/of shear-rates second).

[0080](b) Epoxy group content olefin system copolymer b1:ethylene / methyl acrylate / glycidyl methacrylate = 64/30 / 6 (% of the weight) copolymer.

b2: Ethylene / acrylic acid n-butyl / glycidyl methacrylate = 79/15 / 6 (% of the weight) copolymer.

b3: Ethylene / methyl acrylate / glycidyl methacrylate = 38.7/59 / 2.3 (% of the weight) copolymer.

b4: Ethylene/glycidyl methacrylate = 88/12 (% of the weight) copolymer.

b5: Ethylene/butene-1 = 92/8-% of the weight copolymer.

[0081](c) Inorganic filler c1: Glass fiber (Nippon Electric Glass Co., Ltd. make TN107GH 3 mm in length, and 10 micrometers in diameter)

c2: -- a glass bead ( EGB by Toshiba BARODINI -- spherical 731 B-2)

c3: -- calcium carbonate ( KSS1000 by the Kanehira mining company -- amorphous)

(d) Alkoxy silane compound d1:beta-. 3, 4-epoxycyclohexyl ethyltrimethoxysilane d2:. The polyfunctional epoxy compound e1 which has two or more epoxy groups in one molecule of gamma-(2-ureido ethyl) aminopropyl trimethoxysilane (e): O-cresol novolac glycidyl ether compound S UMI-EPOXY ESCN195HH (made by Sumitomo Chemical [ Co., Ltd. ] Co., Ltd.).

[0082]The comparative examples 1-3, Examples 1-2 (a) PPS resin, (b) olefin system copolymer, And after carrying out the dry blend of the (c) filler at a rate shown in Table 1, melt kneading was carried out with the biaxial extrusion machine set as 280 \*\* (hopper side) - 320 \*\* (tip side) of cylinder temperatures, it pelletized with the strand cutter, and one evening dried at 120 \*\*. Test piece weld strength, cylinder weld strength, and flexural strength were measured using this pellet. A result is shown in Table 1.

[0083]This result shows that the dependencies of (b) olefin system copolymer addition differ in test piece weld strength and cylinder weld strength. That is, although test piece weld strength falls according to the increase in (b) olefin system copolymer addition, cylinder weld strength shows the maximal value in the field of a certain (b) olefin system copolymer addition.

[0084]Examples 3-12, the comparative example 4 (a) PPS resin, (b) olefin system copolymer, And after carrying out the dry blend of the (c) filler at a rate shown in Table 1, melt kneading was carried out with the biaxial extrusion machine set as 280 \*\* (hopper side) - 320 \*\* (tip side) of cylinder temperatures, it pelletized with the strand cutter, and one evening dried at 120 \*\*. Test piece weld strength, cylinder weld strength, and flexural strength were measured using this pellet. A result is shown in Table 1 and 2.

[0085]

[Table 1]

表1  
[0086]  
[Table 2]

	単位	比較例 1	比較例 2	実施例 1	実施例 2	比較例 3	実施例 3	実施例 4	実施例 5
(a) PPS									
種類	--	a1	a1	a1	a1	a1	a1	a1	a1
配合量	重量部	100	100	100	100	100	100	100	100
(b) オレフィン系共重合体									
種類	--	--	b1	b1	b1	b1	b1	b1	b1
配合量	重量部	--	4.5	9.4	12.9	20.5	9.4	9.4	9.4
(c) 無機フィラー		c1	c1	c1	c1	c1	c1/c2	c1/c2	c1/c2
配合量	重量部	43	45	46	48	52	23/23	23/23	23/23
添加剤 (d) 又は (e)									
種類	--	--	--	--	--	--	--	d1	d2
配合量	重量部	0	0	0	0	0	0	0.7	1.0
アスファルトペースト	MPa	75	73.	68	64	60	70	72	72
円筒クエルト強度	N	1750	1820	2250	2320	2000	3000	3300	3200
曲げ強度	MPa	215	201	195	189	173	178	183	185



表 2

	単位	実施例 6	実施例 7	実施例 8	実施例 9	実施例 10	実施例 11	実施例 12	比較例 4
(a) PPS									
種類	--	a1	a1	a1	a1	a1	a1/a2	a1/a3	a1
配合量	重量部	100	100	100	100	100	50/50	50/50	100
(b) オレフィン系共重合体									
種類	--	b1	b1	b2	b3	b4/b5	b1	b1	b1
配合量	重量部	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4
(c) 無機フィラー		c1/c2	c1/c3	c1/c2	c1/c2	c1/c2	c1/c2	c1	c1
配合量	重量部	23/23	23/23	23/23	23/23	23/23	23/23	46	95
添加剤 (d) 又は (e)									
種類	--	d3	d3	d3	d3	d1	d1	--	--
配合量	重量部	1.0	1.0	1.0	1.0	0.7	0.7	0	0
テストピースウェルド強度	MPa	73	69	72	71	72	73	60	61
円筒ウェルド強度	N	3450	3100	3400	3200	3250	3450	1830	1750
曲げ強度	MPa	181	178	181	178	180	187	185	225

[0087] Concomitant use of glass fiber/glass bead is clearly effective to improvement in cylinder weld strength so that the result of Example 3 may show.

[0088] Examples 4-6 show that addition of the compound shown in d1-d3 is also effective in improvement in cylinder weld strength.

[0089]

[Effect of the Invention] As explained above, this invention provides the polyphenylene sulfide resin composition whose weld strength, especially weld strength generated on the side of a cylinder part are very high, and its injection-molding object.

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any

damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\* shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

## DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] Drawing 1 is an explanatory view of the evaluation sample used for measurement of

cylinder weld strength in the example.

[Description of Notations]

1. Piece of cylindrical shape shaping, 2.8 division metal piece (it is wedge mold cavity to center),

3. metal stick, 4. weld part, 5. weld part

a. A pin gate position, b. pin gate position

[Translation done.]

## \* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any

damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.\*\*\* shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

## DRAWINGS

[Drawing 1]

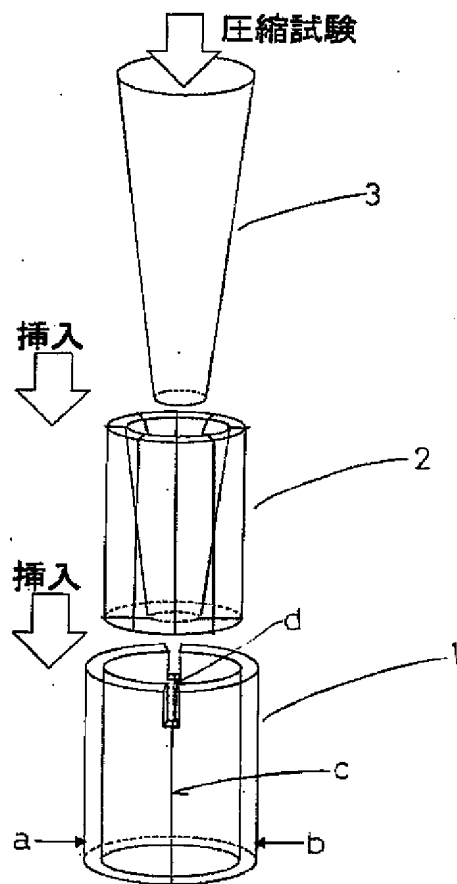


図 1

---

[Translation done.]



2008/03/28

\* NOTICES \*

JPO and INPIT are not responsible for any  
damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

#### CORRECTION OR AMENDMENT

---

[Kind of official gazette]Printing of amendment by the regulation of 2 of Article 17 of Patent Law  
[Section classification] The 3rd classification of the part III gate  
[Publication date]August 2, Heisei 19 (2007.8.2)

[Publication No.]JP,2002-3716,A (P2002-3716A)  
[Date of Publication]January 9, Heisei 14 (2002.1.9)  
[Application number]application for patent 2000-181755 (P2000-181755)  
[International Patent Classification]

*C08L 81/02 (2006. 01*

*B29C 45/00 (2006. 01*

*C08F 210/00 (2006. 01)*

*C08J 5/00 (2006. 01)*

*C08K 3/00 (2006. 01)*

*C08K 5/5415 (2006. 01)*

*C08K 7/04 (2006. 01)*

*C08L 23/00 (2006. 01*

*C08L 33/06 (2006. 01*

*C08L 101/06 (2006. 01)*

*C08L 63/00 (2006. 01*

*B29K 83/00 (2006. 01*

[FI]

C08L 81/02

B29C 45/00

C08F210/00

C08J 5/00 GEZ

C08K 3/00

C08K 5/5415

C08K 7/04

C08L 81/02

C08L 23:00

C08L 33:06

C08L101:06

C08L 63:00



7. The alkoxy silane compound which has a functional group furthermore chosen from the (d) epoxy group, an amino group, an ureido group, and an isocyanate group, (a) Any of the one to 6 above-mentioned paragraph characterized by carrying out 0.1-5 weight-section combination to polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section, or the polyphenylene sulfide resin composition of a statement.
8. Any of the above 1 carrying out 0.1-5 weight-section combination of polyfunctional epoxy compound which has two or more epoxy groups to (a) polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section into the (e) one molecule furthermore - the 7th paragraph, or polyphenylene sulfide resin composition of statement.
- (b) olefin system (\*\*) polymer to polyphenylene-sulfide-resin 100 weight section 9.(a) 5 - 15 weight section, (c) Are an inorganic filler a polyphenylene sulfide resin composition which carries out 20-90 weight-section combination, and as a (b) olefin system (\*\*) polymer, The polyphenylene sulfide resin composition for ejection Plastic solids which has a cylinder part containing at least one sort of epoxy group content olefin system copolymers.
10. Any of the one to 8 above-mentioned paragraph which is an object for ejection Plastic solids which has a cylinder part, or the polyphenylene sulfide resin composition of a statement.
11. The Plastic solid which carries out injection molding of the polyphenylene sulfide resin composition the above 9 or given in 10 paragraphs and which has a cylinder part.

[Amendment 3]

[Document to be Amended]Specification

[Item(s) to be Amended]0036

[Method of Amendment]Change

[The contents of amendment]

[0036]

In this invention, the epoxy group content olefin system copolymer which carries out copolymerization is used as a (b) olefin system (\*\*) polymer, and (b)' alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester and an epoxy group content vinyl monomer the rate of a copolymerization ratio, It is 5 to 48 % of the weight of 52 to 95 % of the weight of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester to the sum total of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester, And the epoxy group content olefin system copolymer which is 0.5 to 15 % of the weight of epoxy group content vinyl monomers is used among (b)' epoxy group content olefin system copolymer to a total of 85 to 99.5 % of the weight of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester. The rate of a copolymerization ratio is 15 to 40 % of the weight of 60 to 85 % of the weight of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester to the sum total of alpha olefin, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester preferably, And the epoxy group content olefin system copolymer which is 0.5 to 15 % of the weight of epoxy group content vinyl monomers is mentioned to a total of 85 to 99.5 % of the weight of alpha olefin in (b)' epoxy group content olefin system copolymer, alpha, and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester.

[Amendment 4]

[Document to be Amended]Specification

[Item(s) to be Amended]0037

[Method of Amendment]Change

[The contents of amendment]

[0037]

As an example of the alpha olefin which is a monomer component of this (b)' epoxy group content olefin system copolymer, ethylene, propylene, butene-1, 4-methylpentene- 1, the hexene- 1, the decene 1, the octene- 1, etc. are mentioned, and ethylene is used preferably especially. These can also use two or more sorts simultaneously.

[Amendment 5]

[Document to be Amended]Specification

[Item(s) to be Amended]0038

[Method of Amendment]Change

[The contents of amendment]

[0038]

As alpha and beta-unsaturated carboxylic acid alkyl ester which is another monomer component of (b)' epoxy group content olefin system copolymer, It is alkyl ester, such as the unsaturated carboxylic acid of 3-8 carbon numbers, for example, acrylic acid, and methacrylic acid, Specifically Methyl acrylate, ethyl acrylate, acrylic acid n-propyl, Acrylic acid isopropyl, acrylic acid n-butyl, acrylic acid t-butyl, Isobutyl acrylate, acrylic acid hexyl, methyl methacrylate, Ethyl methacrylate, methacrylic acid n-propyl, methacrylic acid isopropyl, N-butyl methacrylate, t-butyl methacrylate, methacrylic acid isobutyl, Methacrylic acid hexyl etc. can be illustrated and methyl acrylate, methyl methacrylate, ethyl acrylate, ethyl methacrylate, acrylic acid n-butyl, and n-butyl methacrylate are used preferably among these. These can also use two or more sorts simultaneously.

[Amendment 6]

[Document to be Amended]Specification

[Item(s) to be Amended]0039

[Method of Amendment]Change

[The contents of amendment]

[0039]

alpha, glycidyl ester of beta-unsaturated acid which can illustrate alpha, glycidyl ester of beta-unsaturated acid, glycidyl ether, etc., and are shown especially with a following general formula as an epoxy group content vinyl monomer which is a monomer component of (b)' epoxy group content olefin system copolymer

[Amendment 7]

[Document to be Amended]Specification

[Item(s) to be Amended]0084

[Method of Amendment]Change

[The contents of amendment]

[0084]

Examples 3-11, the comparative example 4 (a) PPS resin, (b) olefin system copolymer, And after carrying out the dry blend of the (c) filler at a rate shown in Table 1, melt kneading was carried out with the biaxial extrusion machine set as 280 \*\* (hopper side) - 320 \*\* (tip side) of cylinder temperatures, it pelletized with the strand cutter, and one evening dried at 120 \*\*. Test piece weld strength, cylinder weld strength, and flexural strength were measured using this pellet. A result is shown in Table 1 and 2.

[Amendment 8]  
[Document to be Amended]Specification  
[Item(s) to be Amended]0086  
[Method of Amendment]Change  
[The contents of amendment]  
[0086]  
[Table 2]



例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	比較例4
	a1	a1	a1	a1/a2	a1/a3	a1
	100	100	100	50/50	50/50	100
	b1	b2	b3	b1	b1	b1
	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4
2	c1/c3	c1/c2	c1/c2	c1/c2	c1	c1
23	23/23	23/23	23/23	23/23	46	95
	d3	d3	d3	d1	---	---
	1.0	1.0	1.0	0.7	0	0
	69	72	71	73	60	61
0	3100	3400	3200	3450	1830	1750
	178	181	178	187	185	225



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-3716

(P2002-3716A)

(43) 公開日 平成14年1月9日 (2002.1.9)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード(参考)
C 0 8 L 81/02		C 0 8 L 81/02	4 F 0 7 1
B 2 9 C 45/00		B 2 9 C 45/00	4 F 2 0 6
C 0 8 F 210/00		C 0 8 F 210/00	4 J 0 0 2
C 0 8 J 5/00	C E Z	C 0 8 J 5/00	C E Z 4 J 1 0 0
C 0 8 K 3/00		C 0 8 K 3/00	
審査請求 未請求 請求項の数12 O L (全 16 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2000-181755(P2000-181755)

(22) 出願日 平成12年6月16日 (2000.6.16)

(71) 出願人 000003159

東レ株式会社

東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号

(72) 発明者 石王 敦

愛知県名古屋市港区大江町9番地の1 東

レ株式会社名古屋事業場内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ポリフェニレンスルフィド樹脂組成物及び射出成形品

(57) 【要約】

【課題】 本発明は、ウェルド強度特に、円筒部分の側面に生成するウェルド強度が極めて高いポリフェニレンスルフィド樹脂組成物及びその射出成形体の取得。

【解決手段】 (a) ポリフェニレンスルフィド樹脂100重量部に対し、(b) オレフィン系(共)重合体を4.5~15重量部、(c) 無機フィラーを20~90重量部配合してなるポリフェニレンスルフィド樹脂組成物であって、(b) オレフィン系(共)重合体として、少なくとも1種のエポキシ基含有オレフィン系共重合体を含有することを特徴とするポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

【請求項9】更に(e)1分子中にエポキシ基を2個以上有する多官能エポキシ化合物を、(a)ポリフェニルサルフイド樹脂100重量部に対し、0.1～5重量部配合することを特徴とする請求項1～8いずれか記載のポリフェニルサルフイド樹脂組成物。

【請求項10】(a)ポリフェニルサルフイド樹脂100重量部に対し、(b)オレフィン系(共)重合体を5～15重量部、(c)無機フィラーを20～90重量部配合してなるポリフェニルサルフイド樹脂組成物である請求項1～9いずれか記載のポリフェニルサルフイド樹脂組成物。

【請求項11】円筒部分を有する射出成形体用である請求項1～9いずれか記載のポリフェニルサルフイド樹脂組成物。有することを特徴とする円筒部分を有する射出成形体用として1種のエポキシ基含有オレフィン系共重合体を含む、(b)オレフィン系(共)重合体として、少なくとも1種のエポキシ基含有オレフィン系共重合体を含むことを特徴とする円筒部分を有する射出成形体用として、円筒部分の側面に生成するフェニル強度が極めて高いポリフェニルサルフイド樹脂組成物及びその射出成形体に関する。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、フェニル強度特

に、円筒部分の側面に生成するフェニル強度が極めて高いポリフェニルサルフイド樹脂組成物及びその射出成形体に関する。

【0002】

【従来の技術】ポリフェニルサルフイド樹脂(以下P

S樹脂と略す)は優れた耐熱性、難燃性、剛性、耐薬品性、電気絶縁性、耐湿熱性などエポキシ樹脂の長所を有し、射出成形用として好適な性質を有しており、射出成形用を中心として各種電気・電子部品、機械部品および自動車部品などに使用されている。

【0003】近年、その耐薬品性及耐湿熱性の高さを活かして、温熱水やガソリン、オイルなどが流れる中空円筒部材へのP S樹脂の適用が進められている。円筒部材を射出成形した場合、その側面部分にフェニル部分がしばしば形成するため、かかる用途への展開を図る上で、フェニル部分の強度向上は重要な技術課題となる。

【0004】P Sのフェニル強度向上技術に関して、例えば特開平3-12453号公報には特定にP S樹脂にシラ化合物を添加する技術が開示されている。

但しそのフェニル強度の測定は、中央部にフェニル部を有するフェニル強度の測定であり、現在課題としている円筒形状部材のフェニル強度に着目した検討はこれまで殆どなされていがないのが現状である。そして、本発明者等の検討結果によると、フェニル強度の測定は、その傾向が必ずしも一致せず、円筒側面のフェニル強度に優れた組成物を得るためには、さらなる検討が必要であった。

【特許請求の範囲】

【請求項1】(a)ポリフェニルサルフイド樹脂100重量部に対し、(b)オレフィン系(共)重合体を5～15重量部、(c)無機フィラーを20～90重量部配合してなるポリフェニルサルフイド樹脂組成物であ

って、(b)オレフィン系(共)重合体として、(b)オレフィン、 $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボキシ酸アルキルエステル及びエポキシ基含有ビニルモノマーを共重合してなるエポキシ基含有オレフィン系共重合体を必須成分として含有することを特徴とするポリフェニルサルフイド樹脂組成物。

【請求項2】(b)エポキシ基含有オレフィン系共重合体の共重合比率が、 $\alpha$ -オレフィンと $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボキシ酸アルキルエステル共重合体の合計に占める割合が、(b)エポキシ基含有オレフィン系共重合体中、 $\alpha$ -オレフィンと $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボキシ酸アルキルエステル共重合体の合計の85～99.5重量%であり、エポキシ基含有ビニルモノマー0.5～15重量%であるエポキシ基含有オレフィン系共重合体を必須成分として含有することを特徴とする請求項1記載のポリフェニルサルフイド樹脂組成物。

【請求項3】(c)無機フィラーとして、繊維状フィラーと非繊維状フィラーを少なくとも各1種以上含有し、かつ繊維状フィラー/非繊維状フィラー重量比が、1/3～3/1であることを特徴とする請求項3記載のポリフェニルサルフイド樹脂組成物。

【請求項4】(c)無機フィラーとして、繊維状フィラーと非繊維状フィラーを少なくとも各1種以上含有し、かつ繊維状フィラー/非繊維状フィラー重量比が、1/3～3/1であることを特徴とする請求項3記載のポリフェニルサルフイド樹脂組成物。

【請求項5】非繊維状フィラーとしてガラス質の非繊維状無機フィラーを用いることを特徴とする請求項1～4いずれか記載のポリフェニルサルフイド樹脂組成物。

【請求項6】(a)ポリフェニルサルフイド樹脂として、実質的に直鎖状のポリフェニルサルフイド樹脂を用いることを特徴とする請求項1～5いずれか記載のポリフェニルサルフイド樹脂組成物。

【請求項7】(a)ポリフェニルサルフイド樹脂として、溶解粘度(310℃、剪断速度1,000/秒)が100～400Pa・sのポリフェニルサルフイド樹脂を用いることを特徴とする請求項1～6いずれか記載のポリフェニルサルフイド樹脂組成物。

【請求項8】更に(d)エポキシ基、アミノ基、ウレイド基、イソシアネート基から選ばれたアルコキシシリル化合物を、(a)ポリフェニルサルフイド樹脂100重量部に対し、0.1～5重量部配合することを特徴とする請求項1～7いずれか記載のポリフェニルサルフイド樹脂組成物。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、ウェルド強度特に、円筒部分の側面に生成するウェルド強度が極めて高いポリフェニレンスルフィド樹脂組成物及びその射出成形体の取得を課題とする。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】そこで本発明者らは上記の課題を解決すべく鋭意検討した結果、PPS樹脂と特定のオレフィン系（共）重合体及び無機フィラーを特定の配合範囲で混合することにより、特異的に高い円筒部ウェルド強度が発現することを見出した。更には、無機フィラーとして繊維状フィラーと非繊維状フィラーを併用することが、円筒部ウェルド強度向上に特に有効であることを見出し本発明に到達した。

【0007】すなわち本発明は以下の各項から構成されるものである。

1. (a) ポリフェニレンスルフィド樹脂 100 重量部に対し、(b) オレフィン系（共）重合体を 5～15 重量部、(c) 無機フィラーを 20～90 重量部配合してなるポリフェニレンスルフィド樹脂組成物であって、

(b) オレフィン系（共）重合体として、(b)'  $\alpha$ -オレフィン、 $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステル及びエポキシ基含有ビニルモノマーを共重合してなるエポキシ基含有オレフィン系共重合体を必須成分として含有することを特徴とするポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

2. (b)' エポキシ基含有オレフィン系共重合体の共重合比率が、 $\alpha$ -オレフィンと  $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステルの合計に対して  $\alpha$ -オレフィン 52～95 重量%と  $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステル 5～48 重量%であり、かつ、(b)' エポキシ基含有オレフィン系共重合体中、 $\alpha$ -オレフィンと  $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステルとの合計 85～99.5 重量%に対し、エポキシ基含有ビニルモノマー 0.5～15 重量%であるエポキシ基含有オレフィン系共重合体を必須成分として含有することを特徴とする請求項 1 記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

3. (c) 無機フィラーとして、繊維状フィラーと非繊維状フィラーを少なくとも各 1 種以上を含有すること特徴とする上記 1～2 項いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

4. (c) 無機フィラーとして、繊維状フィラーと非繊維状フィラーを少なくとも各 1 種以上含有し、かつ繊維状フィラー／非繊維状フィラー重量比が、1/3～3/1であることを特徴とする上記 3 項記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

5. 非繊維状フィラーとしてガラス質の非繊維状無機フィラーを用いることを特徴とする請求項 1～4 いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

6. (a) ポリフェニレンスルフィド樹脂として、実質

的に直鎖状のポリフェニレンスルフィド樹脂を用いることを特徴とする上記 1～5 項いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

7. (a) ポリフェニレンスルフィド樹脂として、熔融粘度（310℃、剪断速度 1,000/秒）が 100～400 Pa・s のポリフェニレンスルフィド樹脂を用いることを特徴とする上記 1～6 項いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

8. 更に (d) エポキシ基、アミノ基、ウレイド基、イソシアネート基から選ばれるアルコキシシラン化合物を、(a) ポリフェニレンスルフィド樹脂 100 重量部に対し、0.1～5 重量部配合することを特徴とする上記 1～7 項いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

9. 更に (e) 1 分子中にエポキシ基を 2 個以上有する多官能エポキシ化合物を、(a) ポリフェニレンスルフィド樹脂 100 重量部に対し、0.1～5 重量部配合することを特徴とする上記 1～8 項いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

10. (a) ポリフェニレンスルフィド樹脂 100 重量部に対し、(b) オレフィン系（共）重合体を 5～15 重量部、(c) 無機フィラーを 20～90 重量部配合してなるポリフェニレンスルフィド樹脂組成物であって、

(b) オレフィン系（共）重合体として、少なくとも 1 種のエポキシ基含有オレフィン系共重合体を含有することを特徴とする円筒部分を有する射出成形体用のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

11. 円筒部分を有する射出成形体用である上記 1～9 項いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。

12. 上記 10 または 11 項記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物を射出成形してなる、円筒部分を有する成形体。

## 【0008】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態を説明する。本発明において「重量」とは「質量」を意味する。

【0009】本発明で使用する (a) ポリフェニレンスルフィド樹脂とは、下記構造式で示される繰り返し単位を

## 【0010】

## 【化 1】



【0011】70モル%以上、より好ましくは90モル%以上を含む重合体であり、上記繰り返し単位が少なすぎると耐熱性が損なわれる傾向にある。また PPS 樹脂はその繰り返し単位の 30モル%未満を、下記の構造式を有する繰り返し単位等で構成することが可能である。

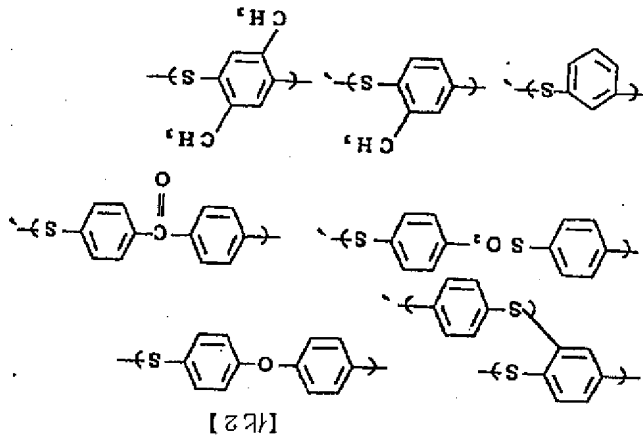
【0013】本発明で用いられる(a) PPS樹脂の溶融粘度は、熔融混練が可能であれば特に制限はないが、通常10~1,000Pa・s(310℃、剪断速度1,000/秒)のものが使用され、10~500Pa・sの範囲がより好ましく用いられる。本発明において、特に優れた円筒部エール強度を得る意味から、100~400Pa・sのPPS樹脂を用いることは好適である。また、流動性とパラスの点からは10Pa・s以上100Pa・s未満のPPS樹脂と100Pa・s以上400Pa・s以下のPPSを併用することをまた好適である。

【0014】かかるPPS樹脂は通常公知の方法即ち特公昭45-3368号公報に記載される比較的分分子量の小さな重合体を得る方法或は特昭52-12240号公報や特開昭61-732号公報に記載される比較的分分子量の大きな重合体を得る方法などによって製造できる。

【0015】本発明において上記の様に得られたPPS樹脂を空气中加熱による架橋/高分子量化、窒素などの不活性ガス雰囲気下あるいは減圧下での熱処理、有機溶媒、熱水、酸水溶液などによる洗浄、酸無水物、アミン、イソシアネート、官能基含有ジスルフィド化合物などの官能基含有化合物による活性化など種々の処理を施した上で使用することももちろん可能である。但し、よって優れた円筒部エール強度を得る意味で、空气中加熱による架橋構造を導入されていない直鎖状のPPS樹脂を用いることは特に好ましい。

【0016】PPS樹脂の加熱による架橋/高分子量化する場合の具体的方法としては、空気、酸素などの酸化性ガス雰囲気下あるいは前記酸化性ガスと窒素、アルゴンなどの不活性ガスとの混合ガス雰囲気下で、加熱容器中で所定の温度において希望する溶融粘度が得られるまで加熱を行う方法が例示できる。加熱処理温度は通常、170~280℃が選択され、好ましくは200~270℃であり、時間は通常の0.5~10時間が選択され、好ましくは2~50時間であるが、この両者をコントロールすることにより目標とする粘度レベルを得るこ

【0012】



(4)

特開2002-3716

とができる。加熱処理の装置は通常の熱風乾燥機でもよいが、効率よくしかもより均一に処理する場合は回転式であるいは攪拌翼付の加熱装置であつてもよい。【0017】P S樹脂を窒素などの不活性ガス雰囲気下あるいは減圧下で熱処理する場合の具体的方法としては、窒素などの不活性ガス雰囲気下あるいは減圧下では、加熱処理温度 $150\sim 280^{\circ}\text{C}$ 、好ましくは $200\sim 270^{\circ}\text{C}$ 、加熱時間は0.5～1.0時間、好ましくは2～5.0時間加熱処理する方法が例示できる。加熱処理の装置は通常の熱風乾燥機でもまた回転式あるいは攪拌翼付の加熱装置であつてもよいが、効率よくしかもより均一に処理する場合は回転式あるいは攪拌翼付の加熱装置を用いるのがより好ましい。

【0018】P S樹脂を有機溶媒で洗浄する場合の具体的な方法は以下のように好ましい。

洗淨に用いる有機溶媒としては、P S樹脂を分解する作用などを有しないものであれば特に制限はないが、例えばN-メチルピロリドン、ジメチルホルムアミド、メチルアセトアミドなどの含窒素極性溶媒、ジメチルスルホキシド、ジメチルアルホペンなどのスルホキシド・スルホン系溶媒、アセトン、メチルエチルケトン、ジエチルケトン、アセトフェノンなどのケトン系溶媒、ジメチルエーテル、ジプロピルエーテル、ブタジエンなどのエーテル系溶媒、クロホルム、塩化メチレン、トリクロエチレン、二塩化エチレン、ジクロルエタン、テトラクロルエタン、クロルベンゼンなどのハロゲン、フッ素系溶媒、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、ベンゾアルコール、エチレングリコール、フロピレングリコール、フェニオール、クレゾール、ポリエチレングリコールなどのアルコール・フェニール系溶媒、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素系溶媒などがあげられる。これらの有機溶媒のなかでN-メチルピロリドン、アセトン、ジメチルホルムアミド、クロホルムなどの使用が好ましい。また、これらの有機溶媒は、1種類または2種類以上の混合で使用される。有機溶媒による洗浄の方法としては、有機溶媒中にP

溶媒は、1種類または2種類以上の混合で使用する。  
50 有機溶媒による洗浄の方法としては、有機溶媒中にPP

8

られ、特に少なくとも1種の $\alpha$ -オレフィンおよび少なくとも1種の $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和酸のグリシジルエステルを共重合してなるエポキシ基含有オレフィン系共重合体が好適に用いられる。

【0024】かかる $\alpha$ -オレフィンの具体例としては、エチレン、プロピレン、ブテン-1、4-メチルペンテン-1、ヘキセン-1、デセン-1、オクテン-1などが挙げられ、中でもエチレンが好ましく用いられる。またこれらは2種以上を同時に使用することもできる。

【0025】一方、 $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和酸のグリシジルエステルとは、一般式

【 0 0 2 6 】

【化3】

$$\begin{array}{ccccccc} \text{CH}_2 = & \text{C} - & \text{C} - & \text{O} - & \text{CH}_2 - & \text{CH} - & \text{CH}_2 \\ & | & || & & & \diagdown & / \\ & \text{R} & \text{O} & & & \text{O} & \end{array}$$

【0027】（ここでRは水素原子または低級アルキル基を示す）で示される化合物であり、具体的にはアクリル酸グリシジル、メタクリル酸グリシジル、エタクリル酸グリシジルなどが挙げられ、中でもメタクリル酸グリシジルが好ましく用いられる。

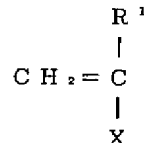
【0028】かかる $\alpha$ -オレフィンおよび $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和酸のグリシジルエステルを共重合してなるオレフィン系共重合体は、上記 $\alpha$ -オレフィンと $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和酸のグリシジルエステルとのランダム、交互、ブロック、グラフト共重合体いずれの共重合様式であっても良い。

【0029】 $\alpha$ -オレフィンおよび $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和酸のグリシジルエステルを共重合してなるオレフィン系共重合体における $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和酸のグリシジルエステルの共重合量は、目的とする効果への影響、重合性、ゲル化、耐熱性、流動性、強度への影響などの観点から、0.5～40重量%、特に3～30重量%が好ましい。

【0030】本発明においてエポキシ基含有オレフィン系共重合体として、 $\alpha$ -オレフィン（１）と $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和酸のグリシジルエステル（２）に加え、更に下記一般式で示される単量体（３）を必須成分とするエポキシ基含有オレフィン系共重合体もまた好適に用いられる。

【0031】

【化4】



【0032】（ここで、 $R^1$  は水素または低級アルキル基を示し、 $X$ は $-COOR^2$  基、 $-CN$ 基あるいは芳香族基から選ばれた基。また $R^2$  は炭素数1～10のアルキル基を示す）

キルエスチル 15～40 重量%であり、かつ、(b)'

エポキシ基含有オレフィン系共重合体中  $\alpha$ -オレフィンと  $\beta$ -不飽和カルボキシアルキル合計 8.5

～9.9、5 重量%に対し、エポキシ基含有ビニルモノマー 0.5～1.5 重量%であるエポキシ基含有オレフィン系共重合体が挙げられる。

【0037】かかる特に好適な (b)' エポキシ基含有

オレフィン系共重合体のモノマー成分である  $\alpha$ -オレフィンの具体例としては、エチレン、プロピレン、ブチ

ン、4-メチルペンテン-1、ヘキセン-1、オクセン-1、オクタ

ン、オクタ-1 など挙げられ、中でもエチレンが好ましく用いられる。またこれらは 2 種以上を同時に使

用することもできる。

【0038】また特に好適な (b)' エポキシ基含有オレフィン系共重合体のモノマー成分である、 $\alpha$ -

不飽和カルボキシアルキルエスチルとしては、炭素数 3～8 個の不飽和カルボキシ酸、例えばアクリル

酸、メタアクリル酸等のアルキルエスチルであって、具

体的にはアクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル

酸ノ-プロピル、アクリル酸イソプロピル、アクリル

酸ノ-ブチル、アクリル酸ノ-ペンチル、アクリル酸ノ-ヘ

キシル、アクリル酸ノ-オクチル、アクリル酸ノ-デシル、

アクリル酸ノ-ドデシル、アクリル酸ノ-ヘキサデシル、

アクリル酸ノ-オクタデシル、アクリル酸ノ-エイコシル、

アクリル酸ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカ

シル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸ノ-ヘキサ

デカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、アクリル酸ノ-

ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸

ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、ア

クリル酸ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカ

シル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸ノ-ヘキサ

デカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、アクリル酸ノ-

ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸

ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、ア

クリル酸ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカ

シル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸ノ-ヘキサ

デカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、アクリル酸ノ-

ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸

かかるオレフィン系共重合体に用いられる  $\alpha$ -オレフィ

ン (1) と  $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和酸のグリシジルエスチル

【0033】一方単量体 (3) の具体例としては、ア

クリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸ノ-プロ

ピル、アクリル酸ノ-ブチル、アクリル酸ノ-ペンチル、

アクリル酸ノ-ヘキシル、アクリル酸ノ-オクチル、ア

クリル酸ノ-デシル、アクリル酸ノ-ヘキサデシル、ア

クリル酸ノ-オクタデシル、アクリル酸ノ-エイコシル、

アクリル酸ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタ

デカシル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸ノ-

ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、ア

クリル酸ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデ

カシル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸ノ-ヘ

キサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、アクリ

ル酸ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカ

シル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸ノ-ヘ

キサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、アクリ

ル酸ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカ

シル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸ノ-ヘ

キサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、アクリ

ル酸ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカ

シル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸ノ-ヘ

キサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、アクリ

ル酸ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカ

シル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸ノ-ヘ

キサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、アクリ

ル酸ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカ

シル、アクリル酸ノ-ドデカシル、アクリル酸ノ-ヘ

キサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカシル、アクリ

ル酸ノ-ヘキサデカシル、アクリル酸ノ-オクタデカ



【0043】かかるエポキシ化ジエン系ブロック共重合体とは、ブロック共重合体、部分水添ブロック共重合体の共役ジエン化合物に由来する二重結合をエポキシ化したものであり、その基体となるブロック共重合体とは、少なくとも1個の芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックAと、少なくとも1個の共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックBとから成るブロック共重合体であり、例えば、A-B、A-B-A、B-A-B-A、(A-B)<sub>4</sub>-Si、A-B-A-B-A等の構造を有する芳香族ビニル化合物-共役ジエン化合物ブロック共重合体である。また部分水添ブロック共重合体とは、該ブロック共重合体を水素添加して得られるものである。以下に該ブロック共重合体、部分水添ブロック共重合体に関してさらに詳細に述べる。

【0044】このブロック共重合体は、芳香族ビニル化合物を5重量%以上95重量%未満、好ましくは10~60重量%、さらに好ましくは10~50重量%含み、芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックAが、芳香族ビニル化合物のホモ重合体ブロック、または芳香族ビニル化合物を50重量%を超え好ましくは70重量%以上含有する芳香族ビニル化合物と共役ジエン化合物との共重合体ブロックの構造を有しており、さらに共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックBが、共役ジエン化合物のホモ重合体ブロック、または共役ジエン化合物を50重量%を超え好ましくは70重量%以上含有する共役ジエン化合物と芳香族ビニル化合物との共重合体ブロックの構造を有するものである。また、これらの芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックA、共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックBは、それぞれの重合体ブロックにおける分子鎖中の共役ジエン化合物または芳香族ビニル化合物の分布がランダム、テーパード（分子鎖中に沿ってモノマー成分が増加または減少するもの）、一部ブロック状またはこれらの任意の組み合わせで成っていてもよく、該芳香族ビニル化合物を主体とする重合体ブロックおよび該共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックがそれぞれ2個以上ある場合は、各重合体ブロックはそれぞれが同一構造であってもよく、異なる構造であってもよい。

【0045】ブロック共重合体を構成する芳香族ビニル化合物としては、例えばスチレン、 $\alpha$ -メチルスチレン、ビニルトルエン、p-第3ブチルスチレン、1,1-ジフェニルエチレン等のうちから1種または2種以上が選択でき、中でもスチレンが好ましい。また共役ジエン化合物としては、例えばブタジエン、イソプレン、1,3-ペンタジエン、2,3-ジメチル-1,3-ブタジエン等のうちから1種または2種以上が選ばれ、中でもブタジエン、イソプレンおよびこれらの組み合わせが好ましい。そして、共役ジエン化合物を主体とする重合体ブロックは、そのブロックにおけるミクロ構造を任意に選ぶことができ、例えばポリブタジエンブロックに

おいては1,2-ビニル結合構造が5~65%の範囲が好ましく、特に好ましくは10~50%の範囲である。

【0046】上記した構造を有するブロック共重合体の数平均分子量は、通常、5,000~1,000,000、好ましくは10,000~800,000、さらに好ましくは30,000~500,000の範囲であり、分子量分布〔重量平均分子量(Mw)と数平均分子量(Mn)との比(Mw/Mn)〕は10以下である。さらにブロック共重合体の分子構造は、直鎖状、分岐状、放射状あるいはこれらの任意の組み合わせの何れであってもよい。

【0047】これらのブロック共重合体の製造方法としては、上記した構造を有するものであればどのような製造方法で得られるものであってもかまわない。例えば、特公昭40-23798号公報に記載された方法により、リチウム触媒を用いて不活性溶媒中で芳香族ビニル化合物-共役ジエン化合物ブロック共重合体を合成することができる。

【0048】また、部分水添ブロック共重合体とは、上記のかかる芳香族ビニル化合物-共役ジエン化合物ブロック共重合体を水素添加することによって得られるものであり、この水添ブロック共重合体の製造方法としては、例えば特公昭42-8704号公報、特公昭43-6636号公報に記載された方法を採用することもできるが、特に得られる水添ブロック共重合体の耐候性、耐熱劣化性に優れた性能を発揮するチタン系水添触媒を用いて合成された水添ブロック共重合体が最も好ましく、例えば、特開昭59-133203号公報、特開昭60-79005号公報に記載された方法により、不活性溶媒中でチタン系水添触媒の存在下に、上記した構造を有するブロック共重合体を水素添加して水添ブロック共重合体を合成することができる。その際、芳香族ビニル化合物-共役ジエン化合物ブロック共重合体の共役ジエン化合物に基づく脂肪族二重結合は0~99%を水素添加せしめ、好ましくは0~70%を水素添加させたものである。なお、これらのブロック共重合体および部分水添ブロック共重合体は上市されており、容易に入手することができる。

【0049】次に、本発明の(b)成分の一つとして用い得るエポキシ化ジエン系ブロック共重合体は、上記した構造を有するブロック共重合体、部分水添ブロック共重合体にエポキシ化剤を反応させ、共役ジエン化合物に基づく脂肪族二重結合をエポキシ化したものである。本発明に用いるエポキシ化ジエン系ブロック共重合体は上記のブロック共重合体または部分水添ブロック共重合体を不活性溶媒中でハイドロパーオキシド類、過酸類などのエポキシ化剤と反応させることにより得ることができる。過酸類としては過ギ酸、過酢酸、過安息香酸の混合物を過酸化水素と、あるいは有機酸を過酸化水素と、あるいはモリブデンヘキサカルボニルをターシャリブチ

重合体の含有量を、(a) ポリフェニルスルホン樹脂 100重量部に対し、5〜15重量部にすることは、高い円筒ヘルド強度を得る上で非常に重要であり、7〜13重量部の範囲が特に好ましい。上記範囲を外れると、円筒ヘルド強度の低下を招くため好ましくな

【0055】次に本発明におけるもう一つの必須成分である、(c) 無機ノリラーについて説明する。

【0056】本発明における無機フィラーの具体例としては、繊維状フィラーと非繊維状フィラーを用いることができ、両者を併用することが、高い一般強度と円筒ウ

【0057】なお本発明における繊維状フラーとは、長さ/直径比が20以上のものと定義する。

【0058】本発明で用い得る繊維状ノライとしては、ガラスファイバー、一方、非繊維状ノライとしては、プラスチック

ト、セオライト、セリサイト、サイト、タルク、カオリ  
シ、クレー、パロフサイト、ベントサイト、アスベ  
スト、アルミナシリケートなどの珪酸塩、アルミナ、酸

化理素、酸化マグネシウム、酸化ジルコニウム、酸化チタン、酸化鉄などの金属化合物、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、フロライトなどの炭酸塩、硫酸カルシウム

△、硫酸バリウムなどの硫酸塩、水酸化カルシウム、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウムなどの水酸化物、ガラスペース、セラミックペース、窒化ホウ素、炭

化粧素、グロフアイト、カーボンプラックおよびシリカなどが挙げられるが、なかでもガラスビーズ、ミルドフアイバー（ガラス短繊維）、ガラス粉などのガラス質フ

イラーが特に好ましい。

【0059】これらは中空であってもよく、さらにほこ  
れら充填剤を2種類以上併用することも可能である。ま

た、これら充填材をイソシアネート系化合物、有機シラン系化合物、有機チタネート系化合物、有機ボロン系化合物、エポキシ化合物などのカッパシラゲルで予備処理

【0060】かかる(c)無機フィラーの配合量は、  
 において好ましい。

(a) ポリフェニレンスルフィド樹脂 100重量部に対し、(c) 無機フイラー 20～90重量部の範囲が選択され、30～60重量部の範囲が特に好ましい。(5)

無機フッ素が多すぎると流動性、ウェルド強度を損なうため好ましくなく、一方少なすぎると剛性低下などの問題が生じ得るため好ましくない。

【0061】本発明では、繊維状フィラーと非繊維状フィラーを併用することは、高い一般強度、剛性と円筒形状に強度を同時に得る上で好ましい。これらを併用す

る場合の併用率としては、維状ノイラー／非維維状ノイラー重量比が、 $1/3 \sim 3/1$  の範囲が好ましい。

ルハイドロパーオキシライドと併用して触媒効果を得ることができ、また、エポキシ化剤の最適量は、使用する個々のエポキシ化剤、所望されるエポキシ化度、使用する個々のフロッグ共重合体などのような可変要因によって決めることができる。なお、得られたエポキシ化エポキシフロッグ共重合体の単離は適当な方法、例えば貧溶媒で沈殿させる方法、重合体を熱水中に攪拌の下で投入し溶媒を蒸発除去する方法、直接脱溶媒法などで行う。

とができる。

【0050】かかるエボキシ化ジエン系ブロック共重合体のエボキシ化の程度に特に規定はないが、オキシラン

酸素濃度0.1重量%以上7重量%以下であることが好ましく、特に1.0重量%以上5重量%以下であることが好ましい。オキシソノ酸素濃度が上記範囲であるとP

PS樹脂組成物の衝撃強化、および外観特性が良好で、層剥離が抑制され、安定した耐熱性が得られる点で好ましい。

【0051】本発明において、(b) オレフィンス系  
(共) 重合体としては、エポキシ基含有オレフィンス系共  
重合体は必須成分であるが、その他のオレフィンス系

【0052】かかるその他のオレフィン系（共）重合体（共）重合体を併用しても良い。

メチル共重合体、エチレン-オクタン共重合体、エチレン-ヘキセン共重合体などのエチレンと $\alpha$ -オレフィン  
の共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチ

レン、ポリブタジエン、エチレン-プロピレニ-ジエノ共重合体、スチレン-ブタジエン共重合体、スチレン-イソプレン共重合体、スチレン-ブタジエン-プロピレニ共重合体（SBS）、スチレン

シー・アイ・ソフ・レ・ノース・チ・レ・ソフ・ロック・共重合体 (S I  
S)、ポリ・メタ・ジエネ、メタ・ジエネ・アクリロニトリル  
共重合体、ポリ・イソプレネ、ブタジエネ・イソプレネ共重合

体、スチレン-エチレン・スチレン-スチレンブロック共重合体 (SEBS)、スチレン-エチレン・プロピル-スチレンブロック共重合体 (SEPS)、上記α-

オレフィンと上記  $\alpha, \beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステルからなるオレフィン系共重合体などが例示でき

酸無水物、琥珀酸無水物、フマル酸無水物などの酸無水物、アクリル酸、メタクリル酸、酢酸ビニルなどのカルボン酸及びそのNa、Zn、K、Ca、Mgなどの塩が

【0053】本発明において、エポキシ基含有オレフィン系重合体以外のオレフィン系（非）重合体を用いる共重合されたオレフィン系共重合体なども例示できる。

場合、その量は (b) オレフィン系 (共) 重合体の全重量の 75 重量%以下であることが好ましく、50 重量%以下の範囲が特に好ましい。王ボキシ基含有オレフィン

シ系共重合体以外のオレフィン系（共）重合体量が多すぎると、ウエルド強度の低下を招き好ましくない。

ノ基、ウレイド基、イソシアネート基から選ばれるアルコキシシラン化合物を、(a)ポリフェニレンスルフィド樹脂100重量部に対し、0.1~5重量部、より好ましくは0.9~2.0重量部、更に好ましくは1.2~2.0重量部添加することは、高い靱性、優れたウェルド強度、優れた成形加工特性(例えばバリ発生量の減少)を得る意味で好ましい。

【0063】かかる化合物の具体例としては、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 $\beta$ -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシランなどのエポキシ基含有アルコキシシラン化合物、 $\gamma$ -ウレイドプロピルトリエトキシシラン、 $\gamma$ -ウレイドプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -(2-ウレイドエチル)アミノプロピルトリメトキシシランなどのウレイド基含有アルコキシシラン化合物、 $\gamma$ -イソシアナトプロピルトリエトキシシラン、 $\gamma$ -イソシアナトプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -イソシアナトプロピルメチルジメトキシシラン、 $\gamma$ -イソシアナトプロピルメチルジエトキシシラン、 $\gamma$ -イソシアナトプロピルエチルジメトキシシラン、 $\gamma$ -イソシアナトプロピルエチルジエトキシシラン、 $\gamma$ -イソシアナトプロピルトリクロロシランなどのイソシアナト基含有アルコキシシラン化合物、 $\gamma$ -(2-アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 $\gamma$ -(2-アミノエチル)アミノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロピルトリメトキシシランなどのアミノ基含有アルコキシシラン化合物が挙げられ、なかでも $\gamma$ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 $\beta$ -(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -(2-アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 $\gamma$ -(2-アミノエチル)アミノプロピルトリメトキシシラン、 $\gamma$ -アミノプロ

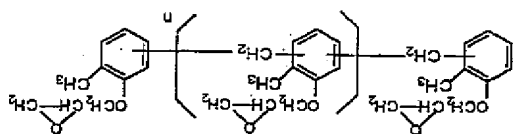
ピルトリメトキシシランなどが特に好ましい。

【0064】本発明において、(e)1分子中にエポキシ基を2個以上有する多官能エポキシ化合物を、(a)ポリフェニレンスルフィド樹脂100重量部に対し、0.1~5重量部、より好ましくは0.9~2.0重量部、更に好ましくは1.2~2.0重量部添加することは、高い靱性、優れたウェルド強度、優れた成形加工特性(例えばバリ発生量の減少)を得る意味で好ましい。

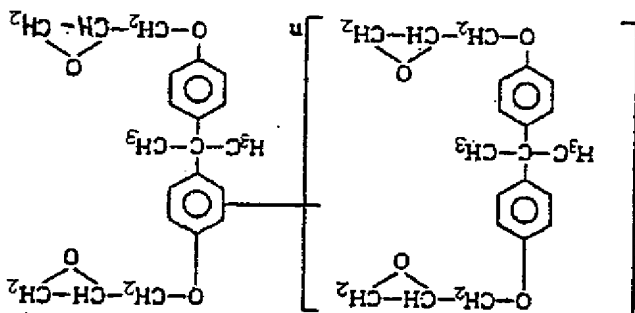
【0065】かかる(e)1分子中にエポキシ基を2個以上有する多官能エポキシ化合物としては、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ビスフェノールAF、ビスフェノールAD、4,4'-ジヒドロキシビフェニル、レゾルシン、サリゲニン、トリヒドロキシジフェニルジメチルメタン、テトラフェニロールエタン、これらのハロゲン置換体およびアルキル基置換体、ブタンジオール、エチレングリコール、エリスリット、ノボラック、グリセリン、ポリオキシアルキレン等のヒドロキシル基を分子内に2個以上含有する化合物とエピクロロヒドリン等から合成されるグリシジルエーテル系、フタル酸グリシジルエステル等のグリシジルエステル系、アニリン、ジアミノジフェニルメタン、メタキシレンジアミン、1,3-ビスアミノメチルシクロヘキサン等の第一または第二アミンとエピクロロヒドリン等から合成されるグリシジルアミン系、等々のグリシジルエポキシ樹脂、エポキシ化大豆油、ビニルシクロヘキセンジオキサイド、ジシクロペンタジエンジオキサイド等々の非グリシジルエポキシ樹脂などが挙げられ、なかでも下記に示した多官能フェノールタイプエポキシ樹脂が好ましく、中でもオルソクレゾールノボラックグリシジルエーテルが特に好ましい。

【0066】

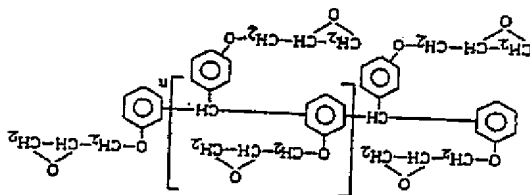
【化6】



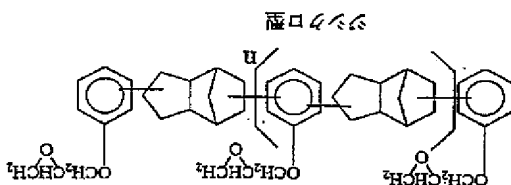
オルソクレノールノポリアク型



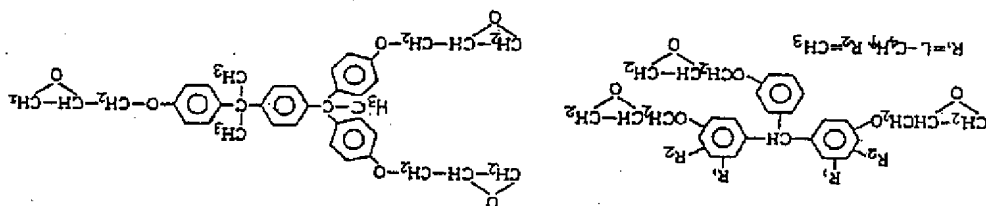
DPPノポリアク型



トリスビクロキシアニルメタン型



ジシクロ型



【化7】

置換3官能型

【0068】なお(e) 1分子中にエポキシ基を2個以上有する多官能エポキシ化合物として、上記(b)エポキシ基含有オレフィン系共重合体は除外する。

【0069】本発明のP S樹脂組成物において、本発明の効果を損なわない範囲において、ポリアルキレンオキサートオリゴマ系化合物、チオエーテル系化合物、エスル系化合物、有機リン化合物などの可塑剤、タル

泡剤などの通常の添加剤を添加することができる。

【0070】また、本発明のPPS樹脂組成物において、本発明の効果を損なわない範囲において、ポリフェニレンオキシド、ポリスルホン、四フッ化ポリエチレン、ポリエーテルイミド、ポリアミドイミド、ポリイミド、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルケトン、ポリチオエーテルケトン、ポリエーテルエーテルケトン、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン610、ナイロン11、ナイロン12、芳香族ナイロン、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンテレフタレート、ポリシクリヘキシルジメチレンテレフタレート、ABS樹脂、ポリアミドエラストマ、ポリエステルエラストマ、ポリアルキレンオキサイド等の他の樹脂を含んでも良い。

【0071】本発明のPPS樹脂組成物の調製方法は特に制限はないが、原料の混合物を単軸あるいは2軸の押出機、バンバリーミキサー、ニーダーおよびミキシングロールなど通常公知の熔融混合機に供給して280〜380℃の温度で混練する方法などを代表例として挙げることができる。原料の混合順序にも特に制限はなく、全ての原材料を配合後上記の方法により熔融混練する方法、一部の原材料を配合後上記の方法により熔融混練し更に残りの原材料を配合し熔融混練する方法、あるいは一部の原材料を配合後単軸あるいは2軸の押出機により熔融混練中にサイドフィーダーを用いて残りの原材料を混合する方法など、いずれの方法を用いてもよい。また、少量添加剤成分については、他の成分を上記の方法などで混練しペレット化した後、成形前に添加して成形に供することももちろん可能である。

【0072】本発明の樹脂組成物は、特に円筒形状射出成形体の側面部に生じるウェルド部分の強度に優れた組成物である。

【0073】従って、円筒形状部分を有する射出成形体用途には有用であり、内部が1気圧以上に加圧される環境下で使用される円筒形状部分を有する射出成形体用途には特に有用である。その具体的な用途としては、ポンプ部品、パイプジョイント、水量調節弁、逃がし弁湯温センサー、水量センサー、水道メーターハウジングなどが例示できる。

【0074】なお、本発明の組成物は上記以外の用途にも適用は可能であり、かかる用途としては、例えばセンサー、LEDランプ、コネクタ、ソケット、抵抗器、リレーケース、スイッチ、コイルボビン、コンデンサー、バリコンケース、光ピックアップ、発振子、各種端子板、変成器、プラグ、プリント基板、チューナー、スピーカー、マイクロフォン、ヘッドフォン、小型モーター、磁気ヘッドベース、パワーモジュール、半導体、液晶、FDDキャリッジ、FDDシャーシ、モーターブラッシュホルダー、モーターインシュレーター、パラボラアンテナ、コンピューター関連部品等に代表される電気

・電子部品；VTR部品、テレビ部品、アイロン、ヘアードライヤー、炊飯器部品、電子レンジ部品、音響部品、オーディオ・レーザーディスク（登録商標）・コンパクトディスク等の音声機器部品、照明部品、冷蔵庫部品、エアコン部品、タイプライター部品、ワードプロセッサ部品等に代表される家庭、事務電気製品部品；オフィスコンピューター関連部品、電話器関連部品、ファクシミリ関連部品、複写機関連部品、洗浄用治具、モーター部品、ライター、タイプライターなどに代表される機械関連部品；顕微鏡、双眼鏡、カメラ、時計等に代表される光学機器、精密機械関連部品；水道蛇口コマ、混合水栓、どの水廻り部品；パルプオルタネーターターミナル、オルタネーターコネクタ、ICレギュレーター、ライトディヤール用ポテンシオメーターベース、排気ガスバルブ等の各種バルブ、燃料関係・排気系・吸気系各種パイプ、エアーインテークノズルスノーケル、インテークマニホールド、燃料ポンプ、エンジン冷却水ジョイント、キャブレターメインボディ、キャブレタースペーサー、排気ガスセンサー、冷却水センサー、油温センサー、ブレーキパッドウェアセンサー、スロットルポジションセンサー、クランクシャフトポジションセンサー、エアーフローメーター、ブレーキパッド摩耗センサー、エアコン用サーモスタットベース、暖房温風フローコントロールバルブ、ラジエーターモーター用ブラッシュホルダー、ウォーターポンプインペラー、タービンベイン、ワイパーモーター関係部品、デューストリビューター、スタータースイッチ、スターターリレー、トランスミッション用ワイヤーハーネス、ウインドウォッシャーノズル、エアコンパネルスイッチ基板、燃料関係電磁気弁用コイル、ヒューズ用コネクタ、ホーンターミナル、電装部品絶縁板、ステップモーターローター、ランプソケット、ランプリフレクター、ランプハウジング、ブレーキピストン、ソレノイドボビン、エンジンオイルフィルター、点火装置ケース、車速センサー、ケーブルライナー等の自動車・車両関連部品、その他各種用途が例示できる。

【0075】

【実施例】以下に実施例を示し、本発明を更に具体的に説明するが、本発明はこれら実施例の記載に限定されるものではない。なお、以下の実施例において、テストピースウェルド強度、円筒ウェルド強度は、次の方法により評価した。

【0076】〔テストピースウェルド強度〕射出成形機（樹脂設定温度：ホッパー下280℃〜先端320℃）を用いて、両端にゲートを有するASTM1号ダンベル片の両端から樹脂組成物を射出し、中央部にウェルド部を有する試験片を得た。この試験片を用い、チャック間距離11.4mm、歪み速度5mm/分の速度で引張試験を行い、破断強度をテストピースウェルド強度とした。

【0077】〔円筒ウェルド強度〕射出成形機（樹脂設

【0081】(c) 無機フイラー

c1: ガラス繊維 (日本電気硝子社製 TN107GH

長さ3mm、直径10μm)

c2: ガラスビーズ (東芝パロダイヤニ社製 EGB7

31B2、球状)

c3: 炭酸カルシウム (金平鉱業社製 KSS100

0、無定型)

(d) アルコキシシラン化合物

d1: β-(3,4-エポキシシクロヘキシル) エチル

トリメトキシシラン

d2: γ-(2-ウレイドエチル) アミノプロピル

メトキシシラン

(e) 1分子中にエポキシ基を2個以上有する多官能エ

ポキシ化合物

e1: オルトクレノールボラックグリシジルエーテル

化合物

SUMI-EPOXY ESCN195HH (住友化学

(株) 社製)。

【0082】比較例1~3、実施例1~2

(a) PPS樹脂、(b) オレフィン系共重合体、および

(c) フイラーを表1に示す割合でドライブレンド

たのち、シリエンダー温度280℃(ホッパ側)~32

0℃(先端側)に設定した2軸押出機で溶融混練し、ス

トラップカッターによりベレット化し、120℃で1晩

乾燥した。かかるベレットを用い、アストロースセル

強度、円筒ウエル強度、曲げ強度を測定した。結果

を表1に示す。

【0083】この結果から、アストロースセル強度

と円筒ウエル強度では、(b) オレフィン系共重合体

添加量の依存性が異なることがわかる。即ちアスト

ロースセル強度は(b) オレフィン系共重合体添加量の

増加に従って低下するが、円筒ウエル強度は、ある

す。

【0084】実施例3~12、比較例4

(a) PPS樹脂、(b) オレフィン系共重合体、および

(c) フイラーを表1に示す割合でドライブレンド

たのち、シリエンダー温度280℃(ホッパ側)~32

0℃(先端側)に設定した2軸押出機で溶融混練し、ス

トラップカッターによりベレット化し、120℃で1晩

乾燥した。かかるベレットを用い、アストロースセル

強度、円筒ウエル強度、曲げ強度を測定した。結果

を表1および表2に示す。

【0085】

【表1】

定温度: ホッパ下280℃~先端320℃)を用い

て、図1に示す外径25mm、内径20mm、高さ30

mmの円筒形状成形片1をピンゲート位置a、bの2点

グートで射出成形した。次に図1に示す8分割金属片2

を円筒形状成形片(1)内に挿入して装着し、次に円錐

型の金属棒3を8分割金属片2に内面に挿入してセット

した。この金属棒3を引張試験機(島津製作所製、オー

トラファグ-2000C)を用い3mm/分の速度で

押し込んで圧縮試験をした。破壊は側面ウエル部4、

5で発生した。その際の破壊強さを円筒ウエル強度と

した。

【0078】[曲げ強度] PPS樹脂ベレットを、シリ

エンダー温度280℃(ホッパ下側)~320℃(ノズ

ル側)、金型温度140℃の条件で住友-ネスタール社

製射出成形機(SG-75 H1PRO M11)を用いて射出成形を

行い、127mm×12.7mm×6.35mmの直方

体試験片を得た。この試験片を用い、温度23℃、相对

湿度50%の雰囲気下で、オリエンテック社製テシロ

ソR TA-1T試験機を用い、12.7mm×12.7mm

の面を支点に接する方向に試験片を置き、支点間距離

100mm、クロスヘッド3mmにて曲げ試験を行っ

て、破断強度を求め曲げ強度とした。

【0079】(a) PPS樹脂

a1: 直鎖状PPS樹脂、熔融粘度50Pa・s (31

0℃、せん断速度1000/秒)、灰分量0.05重量

%

a2: 直鎖状PPS樹脂、熔融粘度250Pa・s (3

10℃、せん断速度1000/秒)、灰分量0.08重

量%

a3: a1を210℃、空気雰囲気下で酸化架橋させ

た。熔融粘度100Pa・s (310℃、せん断速度1

000/秒)。

【0080】(b) エポキシ基含有オレフィン系共重合

体

b1: エチレン/アクリル酸メチル/グリシジルメタ

リレート=64/30/6 (重量%) 共重合体。

b2: エチレン/アクリル酸ロ-アチル/グリシジル

タリレート=79/15/6 (重量%) 共重合体。

b3: エチレン/アクリル酸メチル/グリシジルメタ

リレート=38.7/59/2.3 (重量%) 共重合

体。

b4: エチレン/グリシジルメタリレート=88/1

2 (重量%) 共重合体。

b5: エチレン/アチレン=92/8重量%共重合

体。

表1

	単位	比較例1	比較例2	実施例1	実施例2	比較例3	実施例3	実施例4	実施例5
(a) PPS・									
種類	--	a1	a1	a1	a1	a1	a1	a1	a1
配合量	重量部	100	100	100	100	100	100	100	100
(b) オレフィン系共重合体									
種類	--	--	b1	b1	b1	b1	b1	b1	b1
配合量	重量部	--	4.5	9.4	12.9	20.5	9.4	9.4	9.4
(c) 無機フィラ									
種類		c1	c1	c1	c1	c1	c1/c2	c1/c2	c1/c2
配合量	重量部	43	45	46	48	52	23/23	23/23	23/23
添加剤 (d) 又は (e)									
種類	--	--	--	--	--	--	--	d1	d2
配合量	重量部	0	0	0	0	0	0	0.7	1.0
テストピースウェルド強度	MPa	75	73	68	64	60	70	72	72
円筒ウェルド強度	N	1750	1820	2250	2320	2000	3000	3300	3200
曲げ強度	MPa	215	201	195	189	173	178	183	185

【0086】

【表2】

【0087】実施例3の結果からわかるように、ガラス繊維／ガラスペースの併用は円筒ウエルド強度の向上に明らかに有効である。

【0088】また実施例4～6から、d1～d3に示される化合物の添加も、円筒ウエルド強度の向上に有効であることがわかる。

【0089】

【発明の効果】以上説明したように、本発明は、ウエルド強度特に、円筒部分の側面に生成するウエルド強度が極めて高いポリフェニレンスルフィド樹脂組成物及びその射出成形体を提供するものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】図1は実施例において円筒ウエルド強度の測定に使用した評価サンプルの説明図である。

【符号の説明】

1. 円筒形状成形片、2. 8分割金属片（中央にくさび型穴）、3. 金属棒、4. ウエルド部、5. ウエルド部

a. ビンダーク位置、b. ビンダーク位置

	単位	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	実施例12	比較例4
(a) PPS									
種類	—	a1	a1	a1	a1	a1	a1/a2	a1/a3	a1
配合量	重量部	100	100	100	100	100	50/50	50/50	100
(b) オルフィン系共重合体									
種類	—	b1	b1	b2	b3	b4/b5	b1	b1	b1
配合量	重量部	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4
(c) 無機フィラー									
配合量	重量部	c1/c2 23/23	c1/c3 23/23	c1/c2 23/23	c1/c2 23/23	c1/c2 23/23	c1/c2 23/23	c1 46	c1 95
添加剤 (d) 又は (e)									
種類	—	d3	d3	d3	d3	d1	d1	—	—
配合量	重量部	1.0	1.0	1.0	1.0	0.7	0.7	0	0
ガラスペースウェルド強度	MPa	73	69	72	71	72	73	60	61
円筒ウエルド強度	N	3450	3100	3400	3200	3250	3450	1830	1750
曲げ強度	MPa	181	178	181	178	180	187	185	225

表2



【図1】

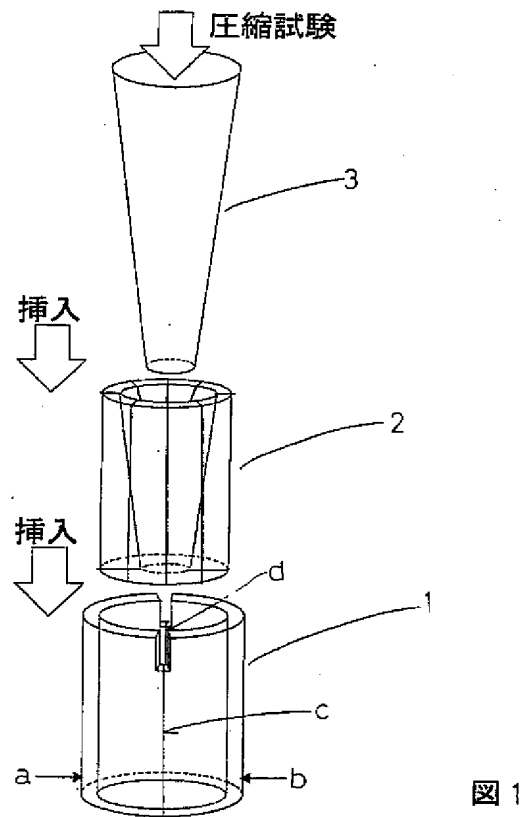


図 1

フロントページの続き

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>  
 C 0 8 K 5/5415  
 7/04  
 //(C 0 8 L 81/02  
 23:00  
 33:06  
 101:06  
 63:00)  
 B 2 9 K 83:00

識別記号

F I  
 C 0 8 K 5/5415  
 7/04  
 (C 0 8 L 81/02  
 23:00  
 33:06  
 101:06  
 63:00)  
 B 2 9 K 83:00

テマコード (参考)

フォーム(参考) 4F071 AA04X AA14X AA33X AA42  
AA62 AA76 AD01 AE17 AF14  
AH07 AH12 AH17 BA01 BB05  
BC05  
4F206 AA34 AM36 JA07  
4J002 AA05X BB00X BG02X CD00Y  
CN011 EX037 EX067 EX077  
FA046 FD016 GL00 GM00  
GN00 GQ00  
4J100 AA00P AL00R AL02R AL03R  
AL04R AL10Q CA05 JA28  
JA43

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第3区分

【発行日】平成19年8月2日(2007.8.2)

【公開番号】特開2002-3716(P2002-3716A)

【公開日】平成14年1月9日(2002.1.9)

【出願番号】特願2000-181755(P2000-181755)

【国際特許分類】

C 0 8 L	81/02	(2006.01)
B 2 9 C	45/00	(2006.01)
C 0 8 F	210/00	(2006.01)
C 0 8 J	5/00	(2006.01)
C 0 8 K	3/00	(2006.01)
C 0 8 K	5/5415	(2006.01)
C 0 8 K	7/04	(2006.01)
C 0 8 L	23/00	(2006.01)
C 0 8 L	33/06	(2006.01)
C 0 8 L	101/06	(2006.01)
C 0 8 L	63/00	(2006.01)
B 2 9 K	83/00	(2006.01)

【F I】

C 0 8 L	81/02	
B 2 9 C	45/00	
C 0 8 F	210/00	
C 0 8 J	5/00	C E Z
C 0 8 K	3/00	
C 0 8 K	5/5415	
C 0 8 K	7/04	
C 0 8 L	81/02	
C 0 8 L	23:00	
C 0 8 L	33:06	
C 0 8 L	101:06	
C 0 8 L	63:00	
B 2 9 K	83:00	

【手続補正書】

【提出日】平成19年6月15日(2007.6.15)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 (a) ポリフェニレンスルフィド樹脂100重量部に対し、(b) オレフィン系(共)重合体を5～15重量部、(c) 無機フィラーを20～90重量部配合してなるポリフェニレンスルフィド樹脂組成物であって、(b) オレフィン系(共)重合体として、(b)'  $\alpha$ -オレフィン、 $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステル及びエポキシ基含有ビニルモノマーを、 $\alpha$ -オレフィンと $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステルの合計に対して $\alpha$ -オレフィン52～95重量%と $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステル5～48重量%の共重合比率で、かつ $\alpha$ -オレフィンと $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボン酸

アルキルエステルとの合計 8.5 ～ 9.9. 5 重量% に対し、エポキシ基含有ビニルモノマー 0.5 ～ 1.5 重量% の共重合比率で共重合してなるエポキシ基含有オレフィン系共重合体を必須成分として含有することを特徴とするポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 2】 (c) 無機フィラーとして、繊維状フィラーと非繊維状フィラーを少なくとも各 1 種以上含有し、かつ繊維状フィラー／非繊維状フィラー重量比が、1/3 ～ 3/1 であることを特徴とする請求項 2 記載のポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 4】 非繊維状フィラーとしてガラス質の非繊維状無機フィラーを用いることを特徴とする請求項 1 ～ 3 ใดれか記載のポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 5】 (a) ポリフェニルスルホン樹脂として、実質的に直鎖状のポリフェニルスルホン樹脂を用いることを特徴とする請求項 1 ～ 4 ใดれか記載のポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 3】 (c) 無機フィラーとして、繊維状フィラーと非繊維状フィラーを少なくとも各 1 種以上含有し、かつ繊維状フィラー／非繊維状フィラー重量比が、1/3 ～ 3/1 であることを特徴とする請求項 2 記載のポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 4】 非繊維状フィラーとしてガラス質の非繊維状無機フィラーを用いることを特徴とする請求項 1 ～ 3 ใดれか記載のポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 5】 (a) ポリフェニルスルホン樹脂として、実質的に直鎖状のポリフェニルスルホン樹脂を用いることを特徴とする請求項 1 ～ 4 ใดれか記載のポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 6】 (a) ポリフェニルスルホン樹脂として、溶解粘度 (310℃、剪断速度 1, 000/秒) が 100 ～ 400 Pa・s のポリフェニルスルホン樹脂を用いることを特徴とする請求項 1 ～ 5 ใดれか記載のポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 7】 更に (d) エポキシ基、アミノ基、ウレイド基、イソシアネート基から選ばれる官能基を有するアルコキシシラン化合物を、(a) ポリフェニルスルホン樹脂 100 重量部 に対し、0.1 ～ 5 重量部配合することを特徴とする請求項 1 ～ 6 ใดれか記載のポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 8】 更に (e) 1 分子中にエポキシ基を 2 個以上有する多官能エポキシ化合物を、(a) ポリフェニルスルホン樹脂 100 重量部 に対し、0.1 ～ 5 重量部配合することを特徴とする請求項 1 ～ 7 ใดれか記載のポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 9】 (a) ポリフェニルスルホン樹脂 100 重量部 に対し、(b) オレフィン系 (共) 重合体を 5 ～ 1.5 重量部、(c) 無機フィラーを 20 ～ 90 重量部配合してなるポリフェニルスルホン樹脂組成物であって、(b) オレフィン系 (共) 重合体として、少なくとも 1 種のエポキシ基含有オレフィン系共重合体を含有することを特徴とする円筒部分を有する射出成形体用のポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 10】 円筒部分を有する射出成形体用である請求項 1 ～ 9 ใดれか記載のポリフェニルスルホン樹脂組成物。

【請求項 11】 請求項 9 または 10 記載のポリフェニルスルホン樹脂組成物を射出成形してなる、円筒部分を有する成形体。

## 【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0007

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0007】

すなわち本発明は以下の各項から構成されるものである。

1. (a) ポリフェニルスルホン樹脂 100 重量部 に対し、(b) オレフィン系 (共) 重合体を 5 ～ 1.5 重量部、(c) 無機フィラーを 20 ～ 90 重量部配合してなるポリフェニルスルホン樹脂組成物であって、(b) オレフィン系 (共) 重合体として、(b) オレフィン、 $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボキシアルキルエステル及びエポキシ基含有ビニルモノマーを、 $\alpha$ -オレフィンと  $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボキシアルキルエステルとの合計に 4.8 重量% の共重合比率で、かつ  $\alpha$ -オレフィンと  $\alpha$ 、 $\beta$ -不飽和カルボキシアルキルエステルとの合計 8.5 ～ 9.9. 5 重量% に対し、エポキシ基含有ビニルモノマー 0.5 ～ 1.5 重量% の共重合比率で共重合してなるエポキシ基含有オレフィン系共重合体を必須成分として含有することを特徴とするポリフェニルスルホン樹脂組成物。

2. (c) 無機フィラーとして、繊維状フィラーと非繊維状フィラーを少なくとも各1種以上を含有することと特徴とする上記1記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。
3. (c) 無機フィラーとして、繊維状フィラーと非繊維状フィラーを少なくとも各1種以上含有し、かつ繊維状フィラー／非繊維状フィラー重量比が、 $1/3 \sim 3/1$ であることを特徴とする上記2項記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。
4. 非繊維状フィラーとしてガラス質の非繊維状無機フィラーを用いることを特徴とする請求項1～3いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。
5. (a) ポリフェニレンスルフィド樹脂として、実質的に直鎖状のポリフェニレンスルフィド樹脂を用いることを特徴とする上記1～4項いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。
6. (a) ポリフェニレンスルフィド樹脂として、熔融粘度(310℃、剪断速度1,000/秒)が100～400 Pa・sのポリフェニレンスルフィド樹脂を用いることを特徴とする上記1～5項いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。
7. 更に(d) エポキシ基、アミノ基、ウレイド基、イソシアネート基から選ばれる官能基を有するアルコキシシラン化合物を、(a) ポリフェニレンスルフィド樹脂100重量部に対し、0.1～5重量部配合することを特徴とする上記1～6項いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。
8. 更に(e) 1分子中にエポキシ基を2個以上有する多官能エポキシ化合物を、(a) ポリフェニレンスルフィド樹脂100重量部に対し、0.1～5重量部配合することを特徴とする上記1～7項いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。
9. (a) ポリフェニレンスルフィド樹脂100重量部に対し、(b) オレフィン系(共)重合体を5～15重量部、(c) 無機フィラーを20～90重量部配合してなるポリフェニレンスルフィド樹脂組成物であって、(b) オレフィン系(共)重合体として、少なくとも1種のエポキシ基含有オレフィン系共重合体を含有することを特徴とする円筒部分を有する射出成形体用のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。
10. 円筒部分を有する射出成形体用である上記1～8項いずれか記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物。
11. 上記9または10項記載のポリフェニレンスルフィド樹脂組成物を射出成形してなる、円筒部分を有する成形体。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0036

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0036】

本発明では、(b) オレフィン系(共)重合体として、(b)'  $\alpha$ -オレフィンと $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステル及びエポキシ基含有ビニルモノマーを共重合してなるエポキシ基含有オレフィン系共重合体が用いられ、共重合比率が、 $\alpha$ -オレフィンと $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステルの合計に対して $\alpha$ -オレフィン52～95重量%と $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステル5～48重量%であり、かつ、(b)' エポキシ基含有オレフィン系共重合体中、 $\alpha$ -オレフィンと $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステル合計85～99.5重量%に対し、エポキシ基含有ビニルモノマー0.5～15重量%であるエポキシ基含有オレフィン系共重合体が用いられる。更に好ましくは共重合比率が、 $\alpha$ -オレフィンと $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステルの合計に対して $\alpha$ -オレフィン60～85重量%と $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステル15～40重量%であり、かつ、(b)' エポキシ基含有オレフィン系共重合体中 $\alpha$ -オレフィンと $\alpha$ ,  $\beta$ -不飽和カルボン酸アルキルエステル合計85～99.5重量%に対し、エポキシ基含有ビニルモノマー0.5～15重量%であるエポキシ基含有オレフィン系共重合体が挙げられる。

【手続補正4】

【補正対象項目名】 0037

【校正の内容】

(9)  $\overline{C} \cup C \cup C$

【手続補正 5】

【補正対象項目名】 0038

【参考文献】

$$(g) \frac{1}{\sqrt{2}}$$

【手続補正 6】

【補正対象項目】 第二主注【事】

【材料の準備】

[illegible]

【補正対象書類名】 明細書

【補正の箇所】

比較例 1

$$\varepsilon \sim (M - \varepsilon_0)$$

【手続補正 8】

【補正対象書類】

【補正方法】変更

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 8 6 】

表2

	単位	実施例6	実施例7	実施例8	実施例9	実施例10	実施例11	比較例4
(a)PPS								
種類	---	a1	a1	a1	a1	a1/a2	a1/a3	a1
配合量	重量部	100	100	100	100	50/50	50/50	100
(b)オレフィン系共重合体								
種類	---	b1	b1	b2	b3	b1	b1	b1
配合量	重量部	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4	9.4
(c)無機フィラー								
配合量	重量部	c1/c2 23/23	c1/c3 23/23	c1/c2 23/23	c1/c2 23/23	c1/c2 23/23	c1 46	c1 95
添加剤(d)又は(e)								
種類	---	d3	d3	d3	d3	d1	---	---
配合量	重量部	1.0	1.0	1.0	1.0	0.7	0	0
アスビースウエルド強度	MPa	73	69	72	71	73	60	61
円筒ウエルド強度	N	3450	3100	3400	3200	3450	1830	1750
曲げ強度	MPa	181	178	181	178	187	185	225

【表2】

(6)